

**Sintesis dan Karakterisasi Serbuk Timbal Zirkonat Titanat
Menggunakan Pelarut Asam Asetat dan Penyetabil
Polietilenglikol 600 dengan Variasi Suhu Penganilan**

SKRIPSI

**Oleh:
ILSI PRASETYANINGSIH
135090201111026**



**JURUSAN KIMIA
FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM
UNIVERSITAS BRAWIJAYA
MALANG
2017**

**Sintesis dan Karakterisasi Serbuk Timbal Zirkonat Titanat
Menggunakan Pelarut Asam Asetat dan Penyetabil
Polietilenglikol 600 dengan Variasi Suhu Penganilan**

SKRIPSI

Sebagai salah satu syarat untuk memperoleh gelar Sarjana Sains
dalam bidang Kimia

**Oleh:
ILSI PRASETYANINGSIH
135090201111026**



**JURUSAN KIMIA
FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN
ALAM
UNIVERSITAS BRAWIJAYA
MALANG
2017**

LEMBAR PENGESAHAN SKRIPSI

Sintesis dan Karakterisasi Serbuk Timbal Zirkonat Titanat Menggunakan Pelarut Asam Asetat dan Penyetabil Polietilenglikol 600 dengan Variasi Suhu Penganilan

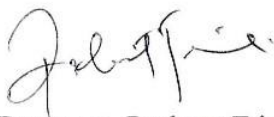
Oleh:

ILSI PRASETYANINGSIH
135090201111026

Setelah dipertahankan di depan Majelis Penguji
pada tanggal
dan dinyatakan memenuhi syarat untuk memperoleh gelar
Sarjana Sains dalam bidang Kimia

Pembimbing I

Pembimbing II



Dr.rer.nat., Rachmat Triandi T., S.Si., M.Si
NIP. 19680226 199203 2 001



Dr. Eng. Masruroh, S.Si., M.Si
NIP. 196006101 199203 1 002

Mengetahui,
Ketua Jurusan Kimia
Fakultas MIPA Universitas Brawijaya



Masruri, S.Si., M.Si., Ph.D
NIP. 19731020 200212 1 001

LEMBAR PERNYATAAN

Saya yang bertanda tangan dibawah ini:

Nama : Ilsi Prasetyaningsih

NIM : 135090201111026

Jurusan : Kimia

Penulis skripsi berjudul :

Sintesis dan Karakterisasi Serbuk Timbal Zirkonat Titanat Menggunakan Pelarut Asam Asetat dan Penyetabil Polietilenglikol 600 dengan Variasi Suhu Penganilan

Dengan ini menyatakan bahwa:

1. Isi dari skripsi yang saya buat adalah benar-benar karya sendiri dan tidak menjiplak karya orang lain, selain nama-nama yang termaktub diisi dan tertulis di daftar pustaka dalam skripsi ini.
2. Apabila dikemudian hari ternyata skripsi yang saya tulis terbukti hasil jiplakan, maka saya akan bersedia menanggung segala resiko yang akan saya terima.

Demikian pernyataan ini dibuat dengan segala kesadaran.

Malang, Agustus 2017

Yang menyatakan,



Ilsi Prasetyaningsih

NIM.135090201111026

Sintesis dan Karakterisasi Serbuk Timbal Zirkonat Titanat Menggunakan Pelarut Asam Asetat dan Penyetabil Polietilenglikol 600 dengan Variasi Suhu Penganilan

ABSTRAK

Timbal Zirkonat Titanat (PZT) telah disintesis dengan menggunakan metode sol-gel dengan modifikasi zirkonium(IV) nitrat pentahidrat sebagai prekursor dan penyetabil polietilenglikol 600 (PEG 600). Penelitian ini dilakukan dengan tujuan untuk mengetahui pengaruh variasi suhu penganilan terhadap pembentukan serbuk kristal PZT. Preparasi prekursor PZT dilakukan dengan variasi proses sintesis. Sintesis melalui prosedur 3 menghasilkan serbuk yang lebih baik. Proses penganilan serbuk PZT menggunakan suhu 600 °C dan 650 °C. Serbuk PZT yang dihasilkan dikarakterisasi menggunakan *Fourier Transform Infrared* (FTIR), mikroskop optik dan difraktometer sinar-X (XRD). Karakterisasi menggunakan FTIR digunakan untuk mengetahui gugus fungsi, mikroskop optik untuk mengetahui morfologi serbuk PZT dan difraktometer sinar (XRD) untuk mengetahui apakah kristal perovskit PZT telah terbentuk. Hasil karakterisasi menggunakan FTIR menunjukkan serbuk PZT menggunakan suhu 650 °C masih terdapat gugus O-H dan C=O. Hasil karakterisasi menggunakan mikroskop optik menunjukkan morfologi serbuk PZT menggunakan suhu 650 °C lebih baik dibandingkan suhu 600 °C. Hasil XRD mengindikasikan telah diperoleh serbuk PZT dengan struktur kristal perovskit setelah dilakukan proses penganilan menggunakan suhu 650 °C. Hasil XRD menunjukkan bahwa suhu penganilan memengaruhi pertumbuhan kristal serbuk PZT, dengan bertambahnya suhu penganilan maka ukuran kristal serbuk PZT semakin besar. Suhu penganilan 650 °C menghasilkan struktur kristal terbaik sesuai dengan data JCPDS nomor 33-784. Ukuran partikel serbuk PZT dihitung dengan menggunakan rumus Debye-Scherrer sehingga dihasilkan kuran kristal serbuk PZT sebesar 36,16 nm.

Kata kunci: serbuk PZT, metode sol-gel, difraksi sinar X.

Synthesis dan Characterization of Lead Zirconate Titanate Powder Using Acetic Acid Solvent and Poly Ethylene Glycol 600 Stabilizer with Annealing Temperature Variation

ABSTRACT

Lead Zirconate Titanate were synthesized by sol-gel method using zirconium(IV) nitrate pentahydrate and poly ethylene glycol 600 (PEG 600). The purpose of this research is to determine the effect of annealing temperature variation to the formation of PZT crystalline powder. PZT precursors are prepared by variation of the synthesis process. Synthesis using the third method produces a better powder. Annealing process of PZT powder is carried out at 600 °C and 650 °C. The product of PZT powder is characterized using Fourier Transform Infrared (FTIR), optical microscope and X-Ray Diffraction (XRD). FTIR used to determine the functional groups, the optical microscope used to determine the morphology of PZT powder, and XRD used to evaluate the formation of PZT powder. FTIR analysis results show that PZT powder at 650 °C has O-H and C=O functional group. Optical microscope analysis result shows that the morphology of PZT powder at 650 °C better than 600 °C. XRD analysis result shows that PZT crystalline powder growth depends on annealing temperature increase. As the annealing temperature increases, the PZT crystalline powder size is increased. XRD result at 650 °C produces the best crystalline structure that agrees well with JCPDS data number 33-784. The particle size of PZT powder is calculated using Debye-Scherrer equation and found to be 36,16 nm.

Keywords: PZT powder, sol-gel method, X-Ray Diffraction.

KATA PENGANTAR

Assalamualaikum Wr. Wb.

Puji syukur kehadiran Allah SWT karena limpahan rahmat dan karunia-Nya penulis dapat menyelesaikan skripsi dengan judul **“Sintesis dan Karakterisasi Serbuk Timbal Zirkonat Titanat Menggunakan Pelarut Asam Asetat dan Penyetabil Polietilenglikol 600 dengan Variasi Suhu Penganilan”**.

Skripsi ini merupakan penelitian yang dilakukan di Laboratorium Anorganik dan ditujukan untuk memenuhi salah satu persyaratan memperoleh gelar Sarjana Sains (S.Si) pada Jurusan Kimia Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam (MIPA) Universitas Brawijaya. Selama penulisan skripsi ini, penulis selalu mendapatkan bimbingan, dorongan, serta semangat dari banyak pihak. Oleh karena itu penulis mengucapkan terimakasih yang sebesar-besarnya kepada:

1. Dr.rer.nat. Rachmat Triandi, T., S.Si., M.Si. selaku dosen pembimbing I dan Dr.Eng Masrurah, S.Si., M.Si. selaku dosen pembimbing II atas segala bimbingan, arahan, perhatian, semangat dan banyak masukan selama pengerjaan penelitian hingga penulisan skripsi.
2. Bapak Aprial Jastirbah selaku pranata Laboratorium Kimia Anorganik Jurusan Kimia yang telah banyak membantu kelancaran selama proses penelitian di laboratorium.
3. Dr. Diah Mardiana, MS selaku dosen penasihat akademik yang selalu sabar mendengarkan keluhan, memberikan saran, masukan dan semangat selama masa perkuliahan.
4. Masruri S.Si, M.Si, Ph.D. selaku ketua Jurusan Kimia Universitas Brawijaya, staf pengajar dan semua karyawan Jurusan Kimia atas segala bantuan yang diberikan.
5. Kedua orang tua dan adik-adik penulis, H. Bapak Zainuddin Saleh, Hj. Ibu Syamsinar Abbas, Putra Pradipta, Ihwani Septiani dan Ihwan Septian atas dukungan doa, semangat, perhatian dan materiil yang diberikan.
6. Teman-teman satu bimbingan (Binaria, Endah, Syaiful, Maulana, Adi, Malisa dan Masita) dan seperjuangan di Laboratorium Anorganik yang telah memberi semangat, tempat curhat, menghibur selama penulis melakukan penelitian.

7. Sahabat-sahabat penulis (April, Risma, Merry, Endah, Angga, Silvi, Ikha, Alfin, Indah, Luthfi, Ema dan Dina), mahasiswa Jurusan Kimia Angkatan 2013, kakak tingkat serta adik tingkat yang telah banyak membantu, menghibur, mendoakan dan berbagi pengalaman.
8. Semua pihak yang tidak dapat penulis sebutkan satu-persatu atas bantuan baik tenaga maupun pikiran yang diberikan.

Penulis menyadari bahwa naskah skripsi ini masih jauh dari kesempurnaan. Oleh karena itu penulis mengharapkan kritik dan saran yang membangun dari semua pihak untuk perbaikan naskah skripsi ini. Semoga naskah skripsi ini dapat bermanfaat bagi perkembangan ilmu pengetahuan.

Malang, 17 Juli 2017

Penulis

DAFTAR ISI

HALAMAN JUDUL	i
LEMBAR PENGESAHAN	ii
LEMBAR PERNYATAAN	iii
ABSTRAK	iv
ABSTRACT	v
KATA PENGANTAR	vi
DAFTAR ISI	viii
DAFTAR TABEL	x
DAFTAR GAMBAR	xi
DAFTAR LAMPIRAN	xii
BAB I PENDAHULUAN	1
1.1 Latar Belakang	1
1.2 Rumusan Masalah	2
1.3 Batasan Masalah	3
1.4 Tujuan Penelitian	3
1.5 Manfaat Penelitian	3
BAB II TINJAUAN PUSTAKA	4
2.1 Material Piezoelektrik	4
2.2 Timbal Zirkonat Titanat $\text{PbZr}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$	5
2.3 Metode <i>Solution-Gelation</i> (Sol-Gel)	5
2.4 Reaksi Sintesis PZT Menggunakan Metode Sol-Gel	7
2.5 Proses Penganilan	9
2.6 Karakterisasi Struktur Kristal dengan Difraktometer Sinar X (XRD)	9
2.7 Karakterisasi Morfologi dengan Mikroskop Optik	10
2.8 Karakterisasi Gugus Fungsi dengan Spektrofotometer Inframerah	11
BAB III METODE PENELITIAN	13
3.1 Tempat dan Waktu Penelitian	13
3.2 Alat Penelitian	13
3.3 Bahan Penelitian	13
3.4 Tahapan Penelitian	14
3.5 Prosedur Kerja	14
3.5.1 Sintesis PZT Menggunakan Metode Sol-Gel	14
3.5.2 Proses Penganilan Menggunakan Tanur	15

3.5.3	Karakterisasi Morfologi Menggunakan Mikroskop Optik	16
3.5.4	Karakterisasi Struktur Kristal Menggunakan Difraktometer Sinar X (XRD)	16
3.5.5	Karakterisasi Gugus Fungsi Menggunakan FTIR	16
3.6	Analisis Data	16
3.6.1	Analisis Data XRD	16
3.6.2	Perhitungan Ukuran Kristal	17
3.6.3	Pengukuran Sudut Kontak	17
BAB IV	HASIL DAN PEMBAHASAN	18
4.1	Sintesis PZT Menggunakan Metode Sol-Gel	18
4.2	Proses Penganilan	22
4.3	Analisis Sudut Kontak	24
4.4	Analisis Morfologi Menggunakan Mikroskop Optik	24
4.5	Analisis Gugus Fungsi Menggunakan FTIR	26
4.6	Analisis Struktur Kristal Menggunakan XRD	29
4.7	Analisis Ukuran Kristal	32
BAB V	KESIMPULAN DAN SARAN	35
5.1	Kesimpulan	35
5.2	Saran	35
	DAFTAR PUSTAKA	36
	LAMPIRAN	40

DAFTAR TABEL

Tabel 4.1	Tahapan sintesis prekursor PZT prosedur 1, 2 dan 3	20
Tabel 4.2	Hasil sintesis prekursor PZT prosedur 1, 2 dan 3	21
Tabel 4.3	Data vibrasi gugus fungsi serbuk PZT	27
Tabel 4.4	Data difraksi bidang kristal serbuk PZT prosedur 1	30
Tabel 4.5	Data difraksi bidang kristal serbuk PZT prosedur 3	31
Tabel 4.6	Ukuran kristal serbuk PZT prosedur 1 dan suhu penganilan 600°C menggunakan persamaan Debye-Scherrer	32
Tabel 4.7	Ukuran kristal serbuk PZT prosedur 1 dan suhu penganilan 650°C menggunakan persamaan Debye-Scherrer	33
Tabel 4.8	Ukuran kristal serbuk PZT prosedur 3 dan suhu penganilan 600°C menggunakan persamaan Debye-Scherrer	33
Tabel 4.9	Ukuran kristal serbuk PZT prosedur 3 dan suhu penganilan 650°C menggunakan persamaan Debye-Scherrer	34
Tabel 4.10	Ukuran kristal serbuk PZT prosedur 1 dan prosedur 3 dengan variasi suhu penganilan	34

DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1	Efek piezoelektrik langsung	4
Gambar 2.2	Efek piezoelektrik balik	4
Gambar 2.3	Struktur PZT	5
Gambar 2.4	Proses <i>sol-gel</i> dan produk yang dihasilkan	6
Gambar 2.5	Reaksi esterifikasi	7
Gambar 2.6	Reaksi hidrolisis	8
Gambar 2.7	Reaksi kondensasi	8
Gambar 2.8	Ilustrasi cahaya mikroskop optik	11
Gambar 2.9	Skema pembentukan spektra IR	11
Gambar 2.10	Spektra FTIR serbuk PZT	12
Gambar 4.1:	Prosedur larutan PZT	19
Gambar 4.2:	Hasil serbuk PZT	23
Gambar 4.3:	Sudut kontak prekursor PZT	24
Gambar 4.4:	Hasil pengamatan mikroskop optik dengan perbesaran 200x suhu 600 °C	25
Gambar 4.5:	Hasil pengamatan mikroskop optik dengan perbesaran 200x suhu 650 °C	26
Gambar 4.6:	Spektra FTIR serbuk PZT	27
Gambar 4.7:	Difraktogram serbuk PZT prosedur 1	29
Gambar 4.8:	Difraktogram serbuk PZT prosedur 3	31

DAFTAR LAMPIRAN

Lampiran A	
Lampiran A.1 Diagram Alir Penelitian	40
Lampiran A.2 Skema Kerja	41
Lampiran B Perhitungan Prekursor untuk Sintesis PZT	
Lampiran	
Lampiran B.1 Larutan Pb 3 mL dengan Konsentrasi 0,3 M	44
Lampiran B.2 Volume Zirkonium(IV) Nitrat Pentahidrat	44
Lampiran B.3 Volume Titanium(IV) Tetra-n-propoksida	44
Lampiran C <i>Joint Committee on Powder Diffraction Standart</i> (JCPDS)	
Lampiran C.1 JCPDS XRD PZT	46
Lampiran C.2 JCPDS XRD ZrO ₂	48
Lampiran C.3 JCPDS XRD ZrO	48
Lampiran C.4 JCPDS XRD TiO ₂	49
Lampiran C.5 JCPDS XRD TiO	49
Lampiran D Perhitungan Ukuran Kristal Serbuk PZT	
Lampiran D.1 Prosedur 1 Suhu penganilan 600 °C	50
Lampiran D.2 Prosedur 1 Suhu penganilan 650 °	51
Lampiran D.3 Prosedur 3 Suhu penganilan 600 °C	52
Lampiran D.4 Prosedur 3 Suhu penganilan 650 °C	53

BAB I

PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Keramik piezoelektrik sangat diminati oleh para peneliti karena memiliki kegunaan yang beragam. Terdapat dua sifat yang sangat memengaruhi keramik piezoelektrik, yaitu sifat piezoelektik dan ferroelektrik. Piezoelektrik adalah sifat material yang terbentuk karena adanya tekanan mekanis sehingga menghasilkan medan listrik. Ferroelektrik adalah gejala terjadinya polarisasi listrik secara spontan yang dapat terjadi akibat adanya muatan listrik [1–3].

Keramik piezoelektrik memiliki banyak kegunaan antara lain sebagai aktuator, transduser dan sensor [4-5]. Keramik pizoelektrik juga banyak digunakan dalam industri modern diantaranya pembuatan film ferroelektrik diantara dua elektroda logam. Selain itu bahan tersebut dapat digunakan untuk pembuatan sensor *Micro Electro Mechanical System* (MEMS) dan penggunaannya pada elektro optik untuk mengubah cahaya dengan satu panjang gelombang menjadi panjang gelombang yang berbeda [3–7].

Timbal zirkonat titanat (PZT) merupakan salah satu keramik piezoelektrik yang baik dan telah banyak dikembangkan. Senyawa sintesis ini memiliki struktur kristal perovskit dengan rumus empiris ABO_3 . Atom A dan B merupakan kation dimana atom A ditempati oleh Pb^{2+} sedangkan atom B ditempati oleh Ti^{4+} atau Zr^{4+} . Atom O yang merupakan anion yang ditempati oleh O^{2-} [3].

Sintesis serbuk PZT dapat dibuat melalui beberapa metode. Metode yang telah digunakan diantaranya *Metal Organic Chemical Vapor Deposition* (MOCVD) [8], *Pulsed Laser Deposition* (PLD) [9], *Solution-Gelation* (Sol-Gel) [10], dan *Chemical Solution Deposition* [11]. Metode sol-gel merupakan salah satu metode yang paling mudah untuk dilakukan dalam sintesis PZT. Sintesis kristal PZT menggunakan metode sol-gel memiliki beberapa keuntungan diantaranya dapat dilakukan dengan suhu rendah dan produk sintesis yang dihasilkan memiliki homogenitas yang tinggi [12].

Pelarut yang sering digunakan pada metode sol-gel yaitu asam asetat. Penggunaan asam asetat dalam sintesis lapis tipis PZT akan memengaruhi morfologi lapis tipis yang dihasilkan. Keunggulan asam

asetat akan menghasilkan lapis tipis PZT yang lebih tipis dan dapat menurunkan kemungkinan terjadinya keretakan pada lapis tipis yang dihasilkan [13].

Polietilenglikol (PEG) adalah salah satu golongan senyawa polieter dari etilen yang dapat digunakan sebagai penyetabil dalam pembuatan lapis tipis PZT. PEG 400 dan 600 merupakan penyetabil yang telah berhasil digunakan. Sintesis PZT menggunakan PEG 400 menghasilkan PZT dengan struktur kristal perovskit ABO_3 pada suhu penganilan 600 °C [14]. Penelitian lain yang telah dilakukan menggunakan PEG 600 sebagai penyetabil, prekursor timbal asetat, titanium isopropoksida, dan zirkonium n-propoksida dan menggunakan suhu penganilan 550 °C hingga 650 °C menghasilkan dua macam struktur kristal. Pada proses penganilan menggunakan suhu 550 °C dan 600 °C dihasilkan struktur kristal perovskit rhombohedral pada suhu 650 °C dihasilkan struktur kristal perovskit tetragonal [10].

Sintesis PZT sering dilakukan dengan perbandingan komposisi Zr:Ti (55:45) dan (60:40) dengan menggunakan metode *sol-gel*. Perbandingan Zr/Ti memberikan pengaruh terhadap karakteristik lapis tipis yang dihasilkan. Hasil lapis tipis dengan perbandingan komposisi 55:45 lebih baik dibandingkan 60:40. Semakin bertambahnya komposisi Zr dan berkurangnya komposisi Ti menyebabkan peningkatan kelimpahan struktur kristal ZrO_2 . Selain itu fase rhombohedral yang terbentuk semakin bertambah sedangkan fase tetragonal semakin berkurang [14].

Berdasarkan uraian latar belakang yang telah dijabarkan, maka pada penelitian ini dilakukan sintesis PZT dengan modifikasi prekursor zirkonium(IV) nitrat pentahidrat serta variasi suhu penganilan untuk pembuatan serbuk PZT.

1.2 Rumusan Masalah

Berdasarkan latar belakang tersebut, maka dapat dirumuskan beberapa permasalahan diantaranya:

1. Bagaimana tahapan sintesis prekursor PZT menggunakan penyetabil PEG 600 dengan metode *sol-gel*?
2. Bagaimana struktur kristal serbuk PZT yang dihasilkan dengan menggunakan penyetabil PEG 600?

3. Bagaimana pengaruh suhu penganilan terhadap karakterisasi struktur kristal dan morfologi serbuk PZT yang dihasilkan?

1.3 Batasan Masalah

Batasan masalah dalam penelitian ini adalah sebagai berikut:

1. Perbandingan rasio mol Zr/Ti (55/45).
2. Proses penganilan dilakukan selama dua jam.
3. Pelarut yang digunakan adalah asam asetat.
4. Sumber Zr yang digunakan sebagai prekursor adalah zirkonium(IV) nitrat pentahidrat.

1.4 Tujuan Penelitian

Berdasarkan perumusan masalah diatas, maka penelitian ini bertujuan:

1. Membuat serbuk PZT menggunakan penyetabil PEG 600 dengan menggunakan metode sol-gel.
2. Mengetahui struktur kristal serbuk PZT yang dihasilkan dengan menggunakan penyetabil PEG 600.
3. Mengetahui pengaruh suhu penganilan terhadap struktur kristal dan morfologi serbuk PZT yang dihasilkan.

1.5 Manfaat Penelitian

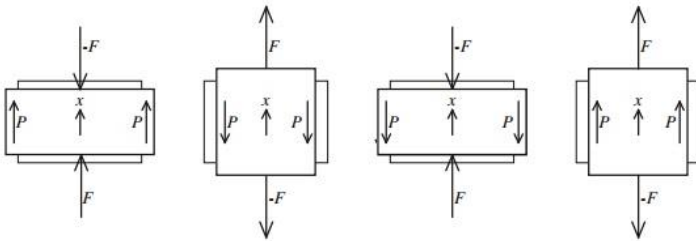
Manfaat penelitian ini adalah menghasilkan serbuk PZT dengan struktur kristal perovskit yang memberikan karakter sebagai bahan dasar lapis tipis piezoelektrik sehingga dapat digunakan sebagai sensor.

BAB II

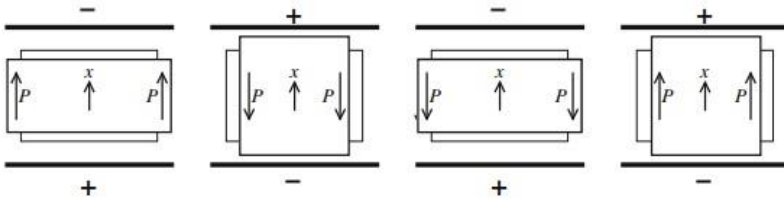
TINJAUAN PUSTAKA

2.1 Material Piezoelektrik

Efek piezoelektrik dibagi menjadi efek piezoelektrik langsung (*direct piezoelectric effect*) dan efek piezoelektrik balik (*converse piezoelectric effect*). Efek piezoelektrik langsung menggambarkan kemampuan materi dalam menghasilkan muatan listrik akibat adanya regangan mekanik sedangkan efek piezoelektrik balik merupakan kemampuan materi untuk mengubah potensial listrik sehingga menghasilkan energi mekanik [15].



Gambar 2.1: Efek piezoelektrik langsung. Gambar diambil dari literatur nomor [2].



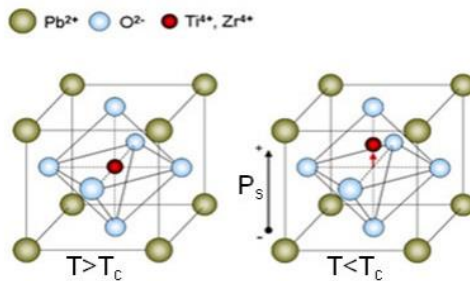
Gambar 2.2: Efek piezoelektrik balik. Gambar diambil dari literatur nomor [2].

Material piezoelektrik telah banyak digunakan dalam bidang teknologi sensor dan aktuator. Penerapan material piezoelektrik sebagai sensor salah satunya dalam pengukuran beban dinamis.

Pengukuran beban dinamis dapat digunakan dalam bidang struktur, rekayasa medis dan alat-alat olahraga. Keuntungan sensor dengan material piezoelektrik yaitu dapat menahan tumbukan yang keras, memiliki *yield strain* yang tinggi dan bersifat ringan [16].

2.2 Timbal Zirkonat Titanat $\text{PbZr}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$

PZT atau yang sering ditulis sebagai $\text{PbZr}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ merupakan senyawa sintesis yang ditemukan pada tahun 1950 oleh Bernard dan Hans Jaffe. Senyawa ini memiliki struktur kristal perovskit dengan rumus empiris ABO_3 [3].



Gambar 2.3: Struktur PZT kubus (kiri) dan tetragonal (kanan). Gambar diambil dari literatur nomor [17].

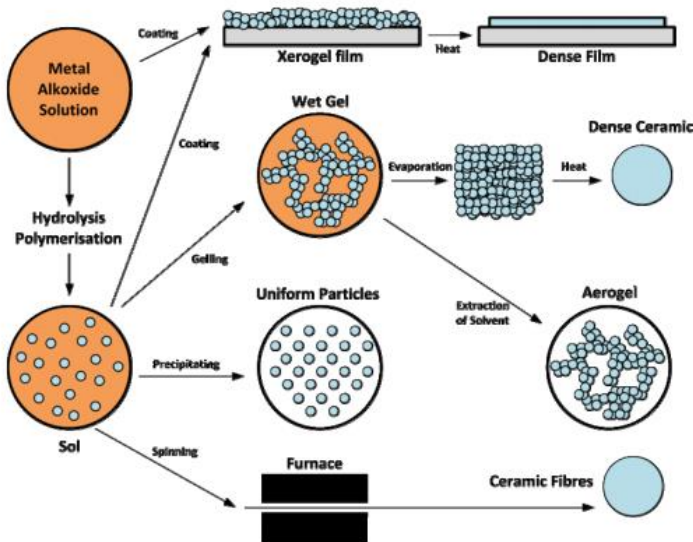
Suhu fasa transisi PZT adalah sekitar 500 °C. Apabila suhu dibawah suhu kritis (T_c) maka struktur PZT yang terbentuk yaitu tetragonal. Ketika suhu diatas T_c maka PZT membentuk struktur kubus dimana posisi kation Zr^{4+} dan Ti^{4+} dapat ditukarkan. Pertukaran antara kation Zr^{4+} dan Ti^{4+} dapat terjadi akibat adanya polarisasi spontan [17].

2.3 Metode *Solution-Gelation* (Sol-Gel)

Metode *solution-gelation* merupakan suatu metode pembuatan material yang melibatkan perubahan fasa yaitu fasa larutan (sol) menjadi fasa padat (gel). Metode ini sering menggunakan klorida logam dan alkoksida logam sebagai prekursor. Reaksi yang terjadi pada metode sol-gel yaitu reaksi hidrolisis dan reaksi kondensasi. Oksida logam terbentuk karena adanya ikatan antara logam pusat

dengan jembatan okso (O-M-O) atau hidroksido (M-OH-M) sehingga menghasilkan logam-oksidasi ataupun polimer logam-hidroksido [18].

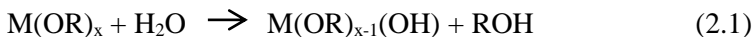
Metode sol-gel membutuhkan pelarut dan penstabil seperti asam asetat dan polietilenglikol 600 (PEG 600). PEG memiliki peran sebagai agen penstabil dan agen pengontrol ukuran sehingga serbuk PZT yang dihasilkan berukuran nano. Penggunaan PEG 600 menghasilkan produk sintesis dengan ukuran partikel sekitar 25 nm [10].



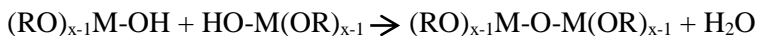
Gambar 2.4: Proses sol-gel dan produk yang dihasilkan. Gambar diambil dari literatur nomor [19].

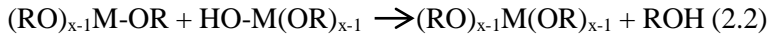
Gambar 2.4 menunjukkan bahwa hasil dari metode sol-gel diantaranya struktur berpori, serbuk padat, serat tipis dan film tipis. Proses reaksi kimia yang terjadi pada metode sol-gel adalah sebagai berikut [12,18]:

a) Reaksi hidrolisis



b) Reaksi kondensasi





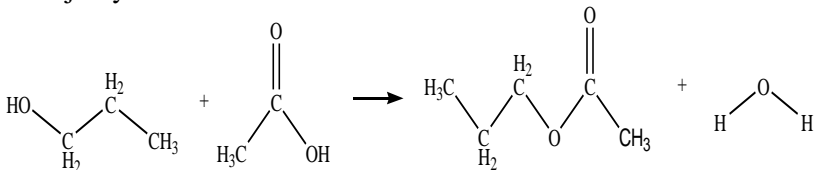
Metode sol-gel memiliki beberapa keuntungan yaitu hemat energi, homogenitas yang baik, suhu proses rendah, ukuran nano partikel dan menghasilkan produk yang murni. Kerugian penggunaan metode sol-gel adalah waktu proses yang cukup lama, menghasilkan residu berupa karbon dengan ukuran residu butir-butir halus [12].

Metode sol-gel membutuhkan penyetabil selama proses berlangsung. Salah satu penyetabil yang dapat digunakan adalah PEG. PEG merupakan surfaktan non ionik yang memiliki gugus fungsi eter yang bersifat hidrofilik dan etil bersifat hidrofobik. Bagian rantai yang bersifat hidrofilik akan menempel pada permukaan koloid sehingga akan melapisi partikel logam. Polietilenglikol berfungsi sebagai agen pengompleks yang mengatur jarak antara logam Pb, Zr dan Ti dari polimer logam oksida [14].

2.4 Reaksi Sintesis PZT Menggunakan Metode Sol-Gel

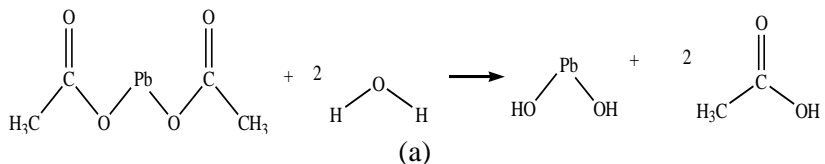
Reaksi yang terjadi selama proses refluks yaitu reaksi esterifikasi, hidrolisis dan kondensasi.

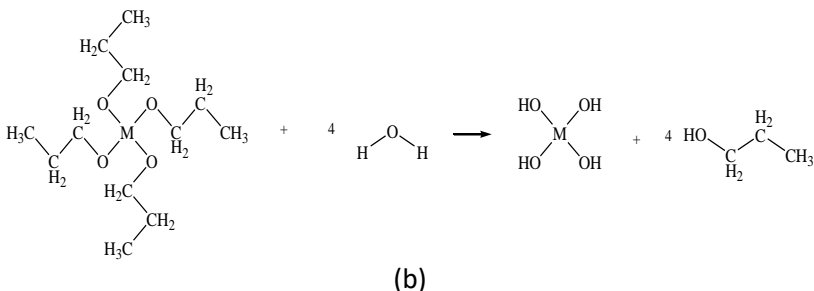
Reaksi esterifikasi pada metode sol-gel terjadi antara alkanol dalam larutan alkoksida dengan asam asetat yang digunakan sebagai pelarut. Reaksi ini menghasilkan ester dan air. Air yang dihasilkan pada reaksi esterifikasi ini memfasilitasi untuk reaksi hidrolisis selanjutnya.



Gambar 2.5: Reaksi esterifikasi. Gambar diambil dari literatur nomor [20].

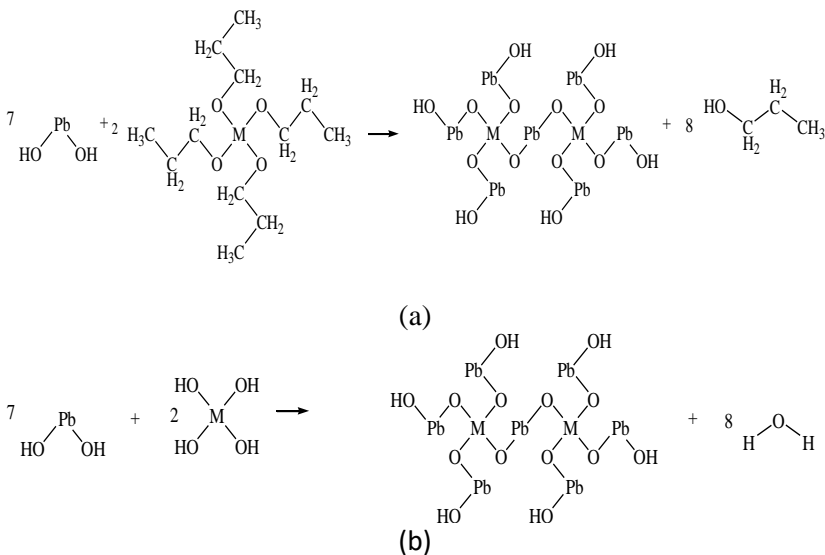
Reaksi hidrolisis yang terjadi ditunjukkan pada Gambar 2.6.





Gambar 2.6: Reaksi hidrolisis timbal(II) asetat (a) dan M(IV) propoksida (b), M = Zr/Ti. Gambar diambil dari literatur nomor [20].

Reaksi kondensasi terjadi melalui dua proses yaitu alkoksolasi dan oksolasi. Reaksi alkoksolasi merupakan reaksi yang terjadi antara molekul hasil reaksi hidrolisis dengan prekursor. Reaksi oksolasi merupakan reaksi yang terjadi antar molekul yang dihasilkan saat reaksi hidrolisis [20].



Gambar 2.7: Reaksi kondensasi alkoksolasi (a) dan kondensasi oksolasi. Gambar diambil dari literatur nomor [20].

2.5 Proses Penganilan

Proses penganilan merupakan suatu proses pemanasan suatu material untuk menyatukan bahan dasar suatu material sehingga menghasilkan struktur kristal yang diinginkan. Selama proses penganilan berlangsung, terjadi dua tahapan. Tahap awal adalah proses penguapan pelarut organik akibat pengaruh pemanasan sehingga material yang terbentuk memiliki bentuk yang lebih halus. Pada tahap ini, unsur-unsur penyusun PZT adalah Pb, Ti, Zr dan O akan mengkristal. Tahapan yang selanjutnya adalah pembentukan kristal PZT. Pembentukan kristal dikarenakan atom-atom penyusun membentuk matriks kristal yang stabil. Difraksi kristal kubus karena pola matriks kristal akan mengikuti pola dasar substrat [21].

Proses penganilan akan menghasilkan kristalinitas yang baik. Semakin tinggi suhu yang digunakan pada penganilan maka ukuran kristal yang terbentuk semakin besar. Selain itu material yang terbentuk memiliki peningkatan kerapatan kristal dan homogenitas. PZT memiliki kristal yang baik pada pemanasan dengan suhu 650 °C [22].

2.6 Karakterisasi Struktur Kristal dengan Difraktometer Sinar X (XRD)

Difraktometer Sinar X (XRD) merupakan salah satu instrumen untuk mengetahui susunan atom atau molekul dalam struktur kristal. Sinar-X akan terbentuk apabila logam ditembakkan menggunakan berkas elektron berenergi tinggi. Kristal akan memberikan hamburan apabila arah bidang kristal terhadap berkas sinar-X. Berdasarkan hukum Bragg, maka diketahui persamaan:

$$2d \sin \theta = n\lambda \quad (2.3)$$

dimana:

θ = sudut deviasi (°)

d = jarak antar bidang dalam kristal (m)

λ = panjang gelombang (nm)

n = orde (0,1,2,3,...)

Pengukuran ukuran kristal suatu material dapat menggunakan rumus Debye-Scherrer dengan persamaan sebagai berikut:

$$L = \frac{K\lambda}{\beta \cos \theta} \quad (2.4)$$

dimana:

L = ukuran kristal

K = faktor bentuk kristal (0,9)

θ = sudut difraksi ($^{\circ}$)

λ = panjang gelombang sinar x (nm)

β = nilai *Full Width at Half Maxima* (rad)

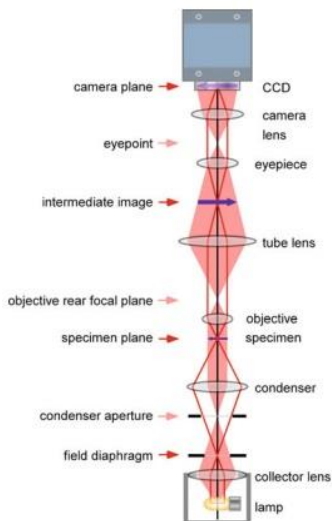
Persamaan Debye-Scherrer dapat dimodifikasi untuk keperluan yang lebih lanjut. Persamaan ini dimodifikasi untuk menentukan suatu nilai akhir ukuran kristal. Persamaan modifikasi Debye-Scherrer adalah [14]:

$$\ln \beta = \ln \frac{K\lambda}{L \cos \theta} = \ln \frac{K\lambda}{L} + \ln \frac{1}{\cos \theta} \quad (2.5)$$

2.7 Karakterisasi Morfologi dengan Mikroskop Optik

Mikroskop optik merupakan salah satu jenis mikroskop yang menggunakan lampu sebagai sumber sinar. Mikroskop ini memiliki fungsi untuk mengamati spesimen yang tidak dapat dilihat langsung dengan mata. Hal penting dalam menggunakan mikroskop optik yaitu pengaturan resolusi dan perbesaran [23].

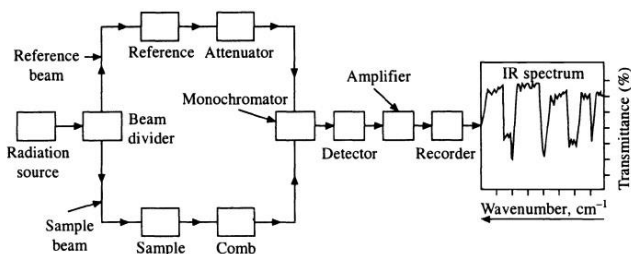
Mikroskop optik memiliki perbesaran 400x sampai 1000x. Prinsip kerja mikroskop optik yaitu lensa kondenser membiaskan cahaya lampu. Setelah itu sinar yang telah melewati lensa kondenser akan mengenai spesimen dan diteruskan oleh lensa objektif. Lensa objektif berfungsi untuk mengatur perbesaran yang digunakan. Kemudian sinar yang akan ditangkap oleh lensa okuler sehingga dapat diamati oleh mata [24].



Gambar 2.8: Ilustrasi cahaya mikroskop optik. Gambar diambil dari literatur nomor [25].

2.8 Karakterisasi Gugus Fungsi dengan Spektrofotometer Inframerah

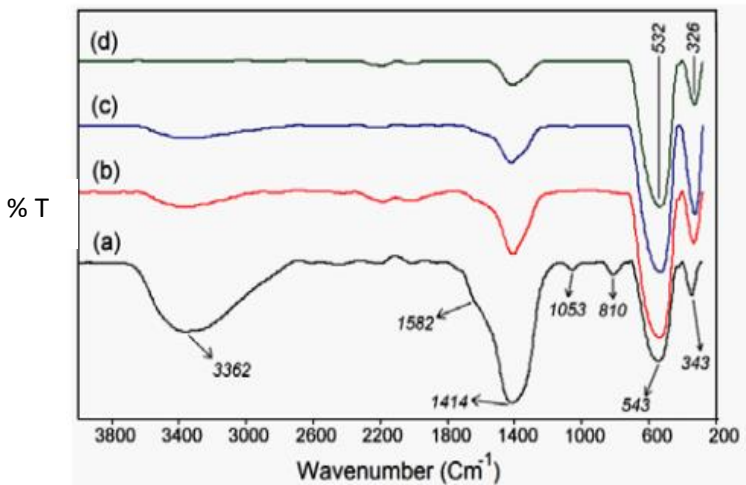
Spektrofotometri inframerah adalah teknik yang digunakan untuk mengidentifikasi gugus fungsi dari senyawa kimia. Sampel yang dapat diidentifikasi menggunakan FTIR yaitu berupa gas, cairan dan padatan. *Fourier Transform Infrared* (FTIR) terdiri dari sumber radiasi, tempat sampel, fotometer, monokromator, detektor, amplifier dan perekam [26].



Gambar 2. 9: Skema pembentukan spektra IR. Gambar diambil dari literatur nomor [26].

Radiasi Inframerah mempunyai dua frekuensi vibrasi yaitu vibrasi ulur (*stretching*) dan vibrasi tekuk (*bending*). Umumnya vibrasi ulur memiliki frekuensi lebih besar dibandingkan vibrasi tekuk. FTIR memiliki sensitifitas yang tinggi, pengaturan panjang gelombang yang lebih baik dan teknik yang lebih sederhana [27].

Karakterisasi menggunakan FTIR dilakukan untuk mengidentifikasi gugus fungsi yang terdapat pada serbuk PZT dan lapis tipis PZT yang dihasilkan. Hal yang menunjukkan bahwa kristal PZT sudah terbentuk yaitu dengan adanya pita vibrasi M-O-M pada bilangan gelombang sekitar 543 cm^{-1} . Selain itu ditunjukkan dengan adanya pita vibrasi pada bilangan gelombang sekitar 343 cm^{-1} yang menunjukkan bahwa adanya ikatan M-O. Berikut merupakan spektra FTIR pada serbuk PZT [10]:



Gambar 2.10: Spektra FTIR serbuk PZT pada suhu kalsinasi 500 °C (a), 550 °C (b), 600 °C (c) dan 650 °C (d). Gambar diambil dari literatur nomor [10].

BAB III

METODE PENELITIAN

3.1 Tempat dan Waktu Penelitian

Penelitian ini dilaksanakan di Laboratorium Kimia Anorganik dan UPT Instrumentasi Jurusan Kimia Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam (FMIPA) Universitas Brawijaya. Karakterisasi menggunakan mikroskop optik dilakukan di Laboratorium Material Jurusan Fisika, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam (FMIPA) Universitas Brawijaya. Karakterisasi FTIR dilakukan di Laboratorium Instrumentasi Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam (FMIPA) Universitas Brawijaya. Pengukuran sudut kontak dilakukan di Laboratorium Instrumentasi dan Pengukuran, Jurusan Fisika, Universitas Brawijaya. Karakterisasi menggunakan XRD dilakukan di Laboratorium Material dan Metalurgi Institut Teknologi Sepuluh November. Jangka waktu penelitian dilaksanakan mulai Bulan Maret - Juni 2017.

3.2 Alat Penelitian

Alat-alat yang digunakan pada penelitian ini adalah seperangkat alat refluks (kondensor, termometer 250 °C, labu leher tiga 100 mL dan pompa air), gelas ukur 10 mL, pipet volum 10 mL, gelas arloji, gelas kimia 50 mL, spatula, corong gelas, pipet tetes, batang magnet 2 cm, cawan porselen, pemanas dan pengaduk magnet, mikro pipet 100 μ L, tanur *Furnace 6000*, neraca analitik *Ohaus Precision Advanced*, oven *Memmert UL 30*, alat pengukur sudut kontak, mikroskop optik *Olympus BX51* & kamera *Olympus DP73*, XRD *Philips type X'pert* dan Spektrofotometer Infra Red *8400S Shimadzu*.

3.3 Bahan Penelitian

Bahan-bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah timbal(II) asetat trihidrat [$\text{Pb}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$], zirkonium(IV) nitrat pentahidrat [$\text{Zr}(\text{NO}_3)_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$] (kemurnian 33%), titanium(IV) tetra-n-propoksida $\text{Ti}(\text{OCH}_2\text{CH}_2\text{CH}_3)_4$ (kemurnian 98%), asam asetat glasial (CH_3COOH), polietilenglikol 600 (PEG 600) dan akuades.

3.4 Tahapan Penelitian

Tahapan penelitian ini secara umum adalah:

1. Sintesis PZT $\text{Pb}(\text{Zr}_{0,55}\text{Ti}_{0,45})\text{O}_3$ menggunakan metode sol-gel
2. Pengukuran sudut kontak menggunakan alat pengukur sudut kontak
3. Proses penganilan menggunakan tanur
4. Karakterisasi gugus fungsi menggunakan FTIR
5. Karakterisasi morfologi menggunakan mikroskop optik
6. Karakterisasi struktur kristal menggunakan difraktometer sinar x (XRD)
7. Analisis data

3.5 Prosedur Kerja

3.5.1 Sintesis PZT Menggunakan Metode *Sol-Gel*

Tahapan sintesis PZT menggunakan metode sol-gel dilakukan berdasarkan literatur nomor [10,21]. Perbandingan komposisi mol prekursor yang digunakan pada prosedur satu hingga prosedur tiga yaitu Pb:Zr:Ti (1:0,55:0,45) dengan massa prekursor berdasarkan perhitungan pada Lampiran B. Tahapan prosedur satu hingga prosedur tiga dapat dilihat pada Tabel 4.1.

3.5.1.1 Prosedur 1

Sintesis $\text{Pb}(\text{Zr}_{0,55}\text{Ti}_{0,45})\text{O}_3$ dimulai dengan timbal(II) asetat trihidrat sebanyak 0,341 g dilarutkan ke dalam asam asetat sebanyak 3 mL pada labu leher tiga sambil diaduk selama 45 menit pada suhu ruang. Kemudian larutan yang dihasilkan ditambahkan PEG 600 sebanyak 3 mL dengan pengadukan selama 15 menit hingga homogen. Larutan yang terbentuk ditambahkan zirkonium(IV) nitrat pentahidrat sebanyak 0,645 g dengan pengadukan pada suhu 30 °C. Lalu larutan direfluks pada 70 °C selama 30 menit. Kemudian larutan didinginkan hingga mencapai suhu ruang. Selanjutnya larutan ditambahkan titanium(IV) tetra-n-propoksida sebanyak 0,111 mL sambil diaduk. Kemudian larutan direfluks pada suhu 90 °C selama 60 menit. Setelah itu dinaikkan suhunya hingga mencapai suhu 130 °C secara perlahan. Tahapan berikutnya larutan didiamkan selama 72 jam sehingga dihasilkan gel basah PZT.

3.5.1.2 Prosedur 2

Sintesis $\text{Pb}(\text{Zr}_{0,55}\text{Ti}_{0,45})\text{O}_3$ dimulai dengan timbal(II) asetat trihidrat sebanyak 0,341 g dan zirkonium(IV) nitrat pentahidrat sebanyak 0,645 g dilarutkan dalam asam asetat sebanyak 3 mL pada labu leher tiga sambil diaduk selama 30 menit pada suhu ruang. Kemudian larutan direfluks selama 60 menit pada suhu 100 °C. Larutan yang dihasilkan ditambahkan PEG 600 sebanyak 3 mL dengan pengadukan. Larutan yang terbentuk didinginkan hingga mencapai suhu ruang. Selanjutnya larutan ditambahkan titanium(IV) tetra-n-propoksida sebanyak 0,111 mL. Setelah itu larutan direfluks pada suhu 100 °C selama 60 menit. Tahapan berikutnya larutan didiamkan selama 72 jam sehingga dihasilkan gel basah PZT.

3.5.1.3 Prosedur 3

Sintesis $\text{Pb}(\text{Zr}_{0,55}\text{Ti}_{0,45})\text{O}_3$ dimulai dengan timbal(II) asetat trihidrat sebanyak 0,341 g dilarutkan ke dalam asam asetat sebanyak 3 mL pada labu leher tiga sambil diaduk selama 45 menit pada suhu ruang. Kemudian larutan yang dihasilkan ditambahkan PEG 600 sebanyak 3 mL dengan pengadukan selama 15 menit hingga homogen. Setelah itu larutan ditambahkan zirkonium(IV) nitrat pentahidrat sebanyak 0,645 g dengan pengadukan pada suhu ruang selama 48 jam. Larutan yang dihasilkan direfluks pada 60 °C selama 60 menit. Kemudian larutan didinginkan hingga mencapai suhu ruang. Selanjutnya larutan ditambahkan titanium(IV) tetra-n-propoksida sebanyak 0,111 mL sambil diaduk pada suhu 60 °C selama 60 menit. Kemudian larutan diaduk selama 48 jam pada suhu ruang. Setelah itu larutan yang dihasilkan didiamkan selama 24 jam sehingga dihasilkan gel basah PZT.

3.5.2 Proses Penganilan Menggunakan Tanur

Proses penganilan serbuk PZT dilakukan selama dua jam menggunakan tanur dengan menggunakan suhu 600 °C. Satu jam awal suhu dinaikkan bertahap dari suhu ruang hingga suhu 600 °C. Dua jam berikutnya suhu dibuat stabil pada suhu kristalisasi PZT. Setelah itu suhu diturunkan hingga mencapai suhu ruang. Perlakuan yang sama dilakukan pada serbuk PZT dengan suhu 650 °C.

3.5.3 Karakterisasi Morfologi Menggunakan Mikroskop Optik

Karakterisasi menggunakan mikroskop optik berfungsi untuk mengetahui morfologi dan ukuran partikel serbuk PZT. Tahapan awal yaitu sampel diletakkan diatas tempat preparat. Kemudian sampel dijepit dan dibuat pengaturan perbesaran paling rendah. Setelah itu diatur pemfokusan sehingga didapatkan bayangan preparat yang jelas. Hasil pengamatan berupa bayangan dapat dilihat dilayar komputer yang terhubung dengan mikroskop optik.

3.5.4 Karakterisasi Struktur Kristal Menggunakan Difraktometer Sinar X (XRD)

Karakterisasi struktur kristal serbuk PZT menggunakan instrumentasi XRD dimana tembaga (Cu) digunakan sebagai sumber katoda dengan panjang gelombang $K\alpha$ sebesar $1,54060 \text{ \AA}$. Posisi sudut yang digunakan yaitu 2θ dengan rentang putar 15° hingga 60° pada kecepatan pindai setiap 1° per menit. Hasil yang didapatkan berupa difraktogram dibandingkan dengan PZT standar JCPDS.

3.5.5 Karakterisasi Gugus Fungsi Menggunakan FTIR

Karakterisasi menggunakan FTIR digunakan untuk mengetahui gugus fungsi pada serbuk PZT yang dihasilkan. Sampel dihaluskan dan dicampurkan dengan KBr. Campuran dibuat membentuk pellet dengan cara campuran sampel dengan KBr dimasukkan pada cetakan. Kemudian campuran ditekan hingga membentuk pellet yang tembus pandang. Setelah itu pellet yang telah terbentuk dimasukkan kedalam *holder* dan dianalisis menggunakan panjang gelombang 4000 cm^{-1} hingga 400 cm^{-1} .

3.6 Analisis Data

3.6.1 Analisis Data XRD

Analisis data XRD dilakukan dengan cara mengamati puncak difraksi kristal yang mewakili difraksi bidang Kristal. Bidang Kristal yang didapatkan dibandingkan dengan data JCPDS nomor 33-784 untuk data PZT yang disajikan pada Lampiran C.

3.6.2 Perhitungan Ukuran Kristal

Penentuan ukuran Kristal dilakukan melalui hasil penurunan persamaan Debye Scherrer (persamaan 2.3). Berdasarkan persamaan tersebut dibuat grafik hubungan antara $\ln(1/\cos\theta)$ sebagai sumbu x dan $\ln\beta$ sebagai sumbu y sehingga diperoleh intersep yang nilainya sama dengan $\ln(K\lambda/L)$ dan ukuran Kristal $(L) = (K\lambda/e^{(\text{nilai intersep})})$.

3.6.3 Pengukuran Sudut Kontak

Pengukuran sudut kontak pada prekursor PZT dilakukan untuk mengetahui sifat dari prekursor apakah hidrofobik atau hidrofilik. Sudut kontak yang diukur merupakan sudut yang dibentuk antara substrat silikon dengan prekursor PZT yang ditetaskan ke permukaan substrat. Pengukuran ini menggunakan prekursor PZT sebanyak 15 μL yang ditetaskan diatas substrat silikon. Pengambilan gambar dilakukan menggunakan alat pengukur sudut kontak 10 detik setelah ditetaskan. Kemudian gambar yang dihasilkan diukur sudutnya baik dari sisi kiri maupun sisi kanan.

BAB IV

HASIL DAN PEMBAHASAN

4.1 Sintesis PZT Menggunakan Metode *Sol-Gel*

Prekursor PZT dibuat menggunakan metode *sol-gel* dengan perbandingan rasio mol Pb:Zr:Ti sebesar 1:0,55:0,45. Prekursor PZT dibuat dengan menggunakan tiga prosedur yang berbeda.

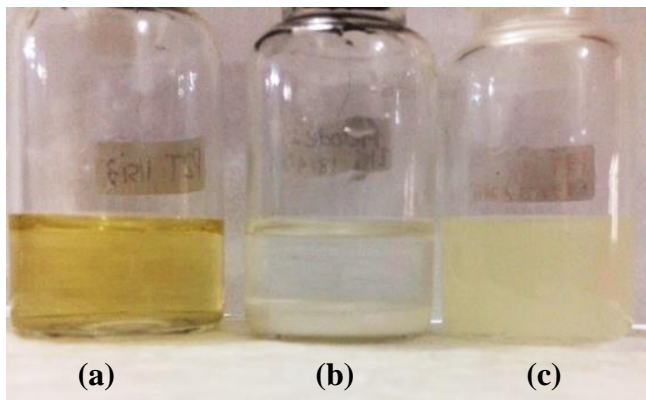
Pembuatan prekursor PZT prosedur 1 dimulai dengan melarutkan timbal(II) asetat trihidrat sebanyak 0,341 g dalam 3 mL asam asetat glasial hingga dihasilkan larutan tidak berwarna (bening). Asam asetat glasial digunakan sebagai pelarut pada penelitian ini karena dapat melarutkan prekursor timbal(II) asetat trihidrat dengan baik. Selain itu, penggunaan asam asetat berfungsi sebagai reaktan pada reaksi esterifikasi yang akan beraksi dengan propanol dalam larutan alkoksida sehingga menghasilkan air yang nantinya akan digunakan pada reaksi hidrolisis. Larutan bening yang terbentuk kemudian ditambahkan PEG 600 sebanyak 3 mL sambil diaduk selama 15 menit. Pencampuran yang dilakukan tetap menghasilkan larutan tidak berwarna. PEG 600 berfungsi sebagai penyetabil sehingga ukuran partikel serbuk yang dihasilkan homogen. Tahapan selanjutnya larutan ditambahkan zirkonium(IV) nitrat pentahidrat sebanyak 0,645 g sambil diaduk. Proses pengadukan dilakukan agar terjadi tumbukan antar molekul sehingga dihasilkan larutan dengan tingkat kehomogenan yang tinggi. Setelah itu, larutan direfluks selama 30 menit pada suhu 70 °C sehingga menghasilkan larutan tidak berwarna. Proses refluks dilakukan bertujuan untuk meningkatkan kehomogenan pada larutan, menghindari terjadinya penguapan pada bahan–bahan yang digunakan serta menghindari kemungkinan terjadinya kontaminasi larutan dengan unsur–unsur lain pada udara bebas.

Proses selanjutnya yaitu larutan yang dihasilkan didinginkan hingga mencapai suhu ruang sambil tetap diaduk dengan tujuan untuk menghasilkan larutan yang lebih stabil. Pada proses ini tidak terjadi perubahan warna pada larutan yang dihasilkan. Kemudian larutan ditambahkan titanium(IV) tetra-n-propoksida sebanyak 0,111 mL. Sumber Ti yang digunakan merupakan senyawa dengan kereaktifan yang tinggi. Propanol pada larutan logam alkoksida berfungsi sebagai reaktan pada reaksi esterifikasi yang akan bereaksi dengan asam asetat sehingga menghasilkan ester dan air. Setelah itu larutan direfluks pada

suhu 90 °C. Kemudian larutan direfluks kembali hingga mencapai suhu 130 °C sehingga menghasilkan warna kuning jernih yang mengindikasikan terbentuknya larutan PZT. Larutan yang terbentuk kemudian didiamkan selama 72 jam. Proses pemeraman bertujuan agar struktur polimer prekursor yang dihasilkan semakin kuat. Hasil pemeraman selama 72 jam berupa gel basah berwarna kuning jernih. Hal ini menunjukkan bahwa terjadinya proses sol-gel dimana prekursor yang awalnya berbentuk larutan berubah menjadi *gel* basah.

Sintesis PZT menggunakan prosedur **2** menghasilkan larutan berwarna putih. Setelah didiamkan selama 72 jam dihasilkan gel basah bening dan terdapat endapan putih. Endapan putih yang terbentuk diperkirakan senyawa kompleks timbal atau senyawa kompleks zirkonium yang stabil [14].

Sintesis PZT menggunakan prosedur **3** dilakukan pengadukan selama 48 jam sebelum proses penganilan bertujuan untuk menghasilkan larutan yang stabil. Prekursor PZT yang dihasilkan berupa larutan keruh. Setelah didiamkan selama 24 jam dihasilkan larutan keruh dan terdapat sedikit endapan. Endapan putih diperkirakan adanya senyawa ZrO_2 atau TiO_2 berdasarkan hasil XRD pada Gambar 4.8. Gel basah hasil pemeraman pada prosedur **1**, **2** dan **3** ditunjukkan pada Gambar 4.1.



Gambar 4.1: Larutan PZT: (a) prosedur **1**, (b) prosedur **2**, (c) prosedur **3**.

Prosedur **1** hingga prosedur **3** memiliki perbandingan rasio mol yang sama namun dengan tahapan penambahan bahan yang

berbeda. Tahapan dan hasil sintesis pada prosedur **1** hingga prosedur **3** dapat dilihat pada Tabel 4.1 dan Tabel 4.2.

Tabel 4.1: Tahapan sintesis prekursor PZT prosedur **1**, **2** dan **3**.

No.	Prosedur		
	1	2	3
1.	timbal(II) asetat trihidrat + asam asetat glasial	timbal(II) asetat trihidrat + zirkonium(IV) nitrat pentahidrat +asam asetat glasial	timbal(II) asetat trihidrat + asam asetat glasial
2.	Tambahkan PEG 600		Tambahkan PEG 600
3.		Refluks 100 °C	
4.	Tambahkan zirkonium(IV) nitrat pentahidrat		Tambahkan zirkonium(IV) nitrat pentahidrat
5.		Tambahkan PEG 600	
6.		Dinginkan hingga suhu ruang	Aduk 48 jam
7.	Refluks 70 °C		Refluks 60 °C
8.		Tambahkan titanium (IV) tetra-n-propoksida	
9.	Dinginkan hingga suhu ruang		Dinginkan hingga suhu ruang
10.	Tambahkan titanium (IV) tetra-n-propoksida		Tambahkan titanium (IV) tetra-n-propoksida
11.	Refluks 90 °C		
12.	Refluks 130 °C	Refluks 100 °C	Refluks 60 °C
13.			Aduk 48 jam
14.	Diamkan 72 jam	Diamkan 72 jam	Diamkan 24 jam

Tabel 4.2: Hasil sintesis prekursor PZT prosedur 1, 2 dan 3

No.	Prosedur		
	1	2	3
1.	Larutan bening	Larutan berwarna putih	Larutan bening
2.	Larutan bening kental		Larutan bening kental
3.		Larutan berwarna putih	
4.	Larutan berwarna keruh		Larutan berwarna keruh
5.		Larutan berwarna putih susu kental	
6.		Larutan berwarna putih kental	Larutan bening
7.	Larutan bening		Larutan berwarna keruh
8.		Larutan berwarna putih kekuningan kental	
9.	Larutan bening		Larutan berwarna keruh
10.	Larutan bening		Larutan bening
11.	Larutan berwarna kekuningan		
12.	Larutan berwarna kuning jernih	Larutan berwarna putih	Larutan berwarna kekuningan keruh
13.			Larutan berwarna kekuningan keruh
14.	Terbentuk gel berwarna kuning jernih	Terbentuk gel bening dan terdapat endapan putih	Terbentuk gel keruh dan terdapat endapan putih

4.2 Proses Penganilan

Suhu penganilan akan memengaruhi pembentukan serbuk PZT yang dihasilkan. Proses penganilan dilakukan untuk meningkatkan kehalusan butir dan menghasilkan butir yang memiliki tingkat kehomogenan yang tinggi. Sebelum dilakukan penganilan, prekursor PZT yang terbentuk dikeringkan terlebih dahulu di dalam oven pada suhu 95 °C hingga dihasilkan prekursor PZT kering. Pengeringan ini bertujuan untuk menghilangkan sebagian pelarut organik pada prekursor PZT. Kemudian dilakukan penganilan prekursor PZT kering menggunakan suhu 600 °C dan 650 °C selama dua jam. Proses penganilan dilakukan untuk menumbuhkan kristal perovskit PZT dan menghilangkan pelarut yang masih terdapat pada prekursor. Penggunaan suhu yang berbeda yaitu suhu 600 °C dan 650 °C bertujuan untuk mengetahui suhu terbaik pada proses pembentukan kristal perovskit PZT yang maksimal. Proses penganilan menghasilkan serbuk PZT sebagaimana yang tampak pada Gambar 4.2.



(a)



(b)



(c)



(d)

Gambar 4.2: Hasil serbuk PZT: (a) prosedur 1 suhu 600 °C, (b) prosedur 1 suhu 650 °C, (c) prosedur 3 suhu 600 °C, (d) prosedur 3 suhu 650 °C.

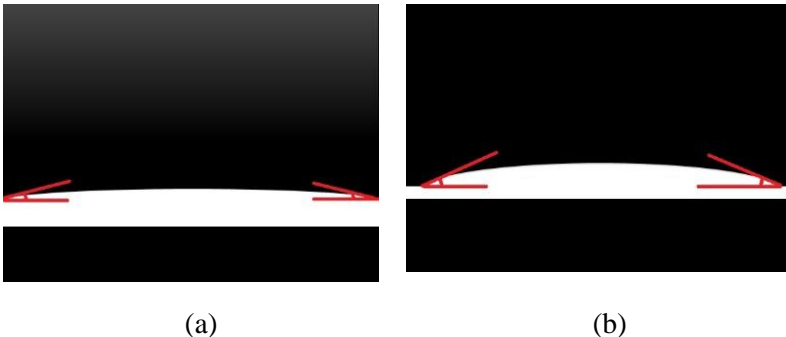
Hasil penganilan menghasilkan warna serbuk yang berbeda baik pada prosedur 1 maupun pada prosedur 3. Serbuk PZT prosedur 1 dengan menggunakan suhu penganilan 600 °C menghasilkan serbuk berwarna jingga kecoklatan sedangkan serbuk PZT prosedur 1 menggunakan suhu penganilan 650 °C menghasilkan serbuk berwarna jingga kekuningan. Serbuk PZT yang dihasilkan pada prosedur 3 menggunakan suhu penganilan 600 °C menghasilkan serbuk berwarna putih kecoklatan, sedangkan serbuk PZT dengan menggunakan suhu penganilan 650 °C menghasilkan serbuk berwarna putih kekuningan. Serbuk PZT yang dihasilkan baik pada prosedur 1 maupun prosedur 3 dengan menggunakan suhu penganilan 650 °C menghasilkan butiran serbuk yang lebih kasar dibandingkan serbuk PZT dengan suhu penganilan 600 °C.

Proses kristalisasi Pb, Zr, Ti dan O menjadi kristal PZT terjadi saat proses pemanasan pada suhu tertentu. Proses pemanasan secara bertahap dari suhu ruang hingga suhu variasi penganilan. Proses penganilan ditahan pada variasi suhu tertentu untuk menghilangkan pelarut. Kemudian suhu penganilan diturunkan secara bertahap hingga mencapai suhu ruang. Hal ini dilakukan agar terbentuk struktur kristal perovskit PZT dari atom-atom penyusunnya.

4.3 Analisis Sudut Kontak

Nilai sudut kontak tetesan prekursor PZT terhadap substrat silikon diperoleh berdasarkan hasil pengamatan melalui alat pengukur sudut kontak yang dihubungkan langsung dengan komputer. Hasil pengambilan gambar ditampilkan dalam bentuk ukur proyektor berskala, kemudian sudut kontak pada sisi kiri dan kanan diukur dengan menggunakan busur.

Sudut kontak air pada substrat silikon adalah sebesar $119,7^\circ$ [28]. Hal ini menunjukkan bahwa substrat silikon bersifat hidrofobik karena sudut yang terbentuk $>90^\circ$. Hasil pengukuran sudut kontak pada prekursor PZT prosedur 1 menunjukkan sudut sebesar $14,5^\circ$ dan pada prosedur 3 sebesar $21,5^\circ$. Hasil pengukuran menunjukkan sudut $<90^\circ$. Hal tersebut menunjukkan bahwa prekursor PZT memiliki sudut yang sama dengan substrat silikon yaitu bersifat hidrofobik. Kesamaan sifat antara prekursor PZT dengan substrat silikon menunjukkan bahwa prekursor PZT dapat menempel dengan baik apabila akan digunakan untuk pembuatan lapis tipis diatas substrat silikon. Pengukuran sudut kontak menghasilkan gambar yang ditunjukkan pada Gambar 4.3.



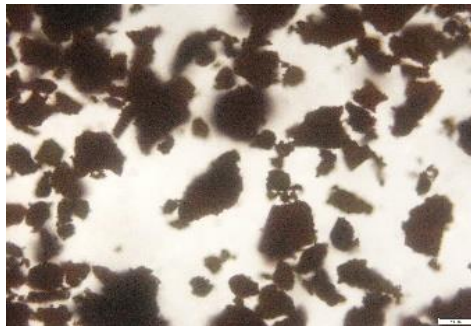
Gambar 4.3: Sudut kontak prekursor PZT: (a) prosedur 1 dan (b) prosedur 3.

4.4 Analisis Morfologi Menggunakan Mikroskop Optik

Setelah dilakukan proses penganilan, serbuk PZT dikarakterisasi menggunakan mikroskop optik. Analisis menggunakan mikroskop optik bertujuan untuk mengetahui secara umum morfologi permukaan

serbuk PZT pada suhu penganilan 600 °C dan 650 °C. Pengamatan morfologi serbuk PZT digunakan dengan perbesaran 200x.

Suhu penganilan 600 °C menghasilkan serbuk dengan ukuran partikel yang lebih kecil dibandingkan dengan menggunakan suhu penganilan 650 °C. Butiran-butiran serbuk PZT yang dihasilkan menggunakan suhu penganilan 650 °C memiliki tekstur lebih kasar apabila disentuh. Serbuk PZT dengan menggunakan suhu penganilan 600 °C menghasilkan butiran-butiran kristal dan apabila disentuh terasa lebih lembut dan mudah menghilang. Hal ini menunjukkan bahwa pada suhu penganilan 650 °C dihasilkan stuktur kristal perovskit yang baik. Hasil pengamatan serbuk PZT menggunakan mikroskop optik dengan perbesaran 200x dapat dilihat pada Gambar 4.4 dan Gambar 4.5.

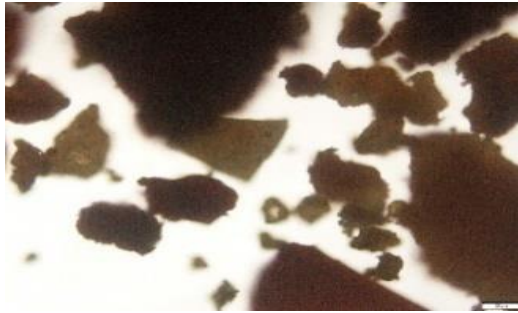


(a)

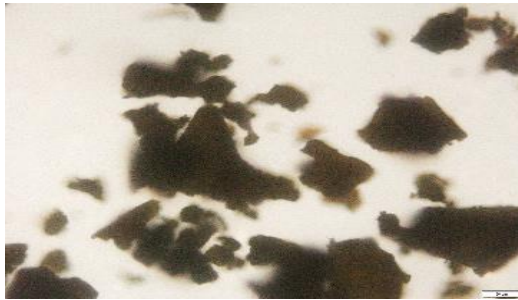


(b)

Gambar 4.4: Hasil pengamatan mikroskop optik dengan perbesaran 200x: (a) prosedur 1 suhu 600 °C, (b) prosedur 3 suhu 600 °C.



(a)

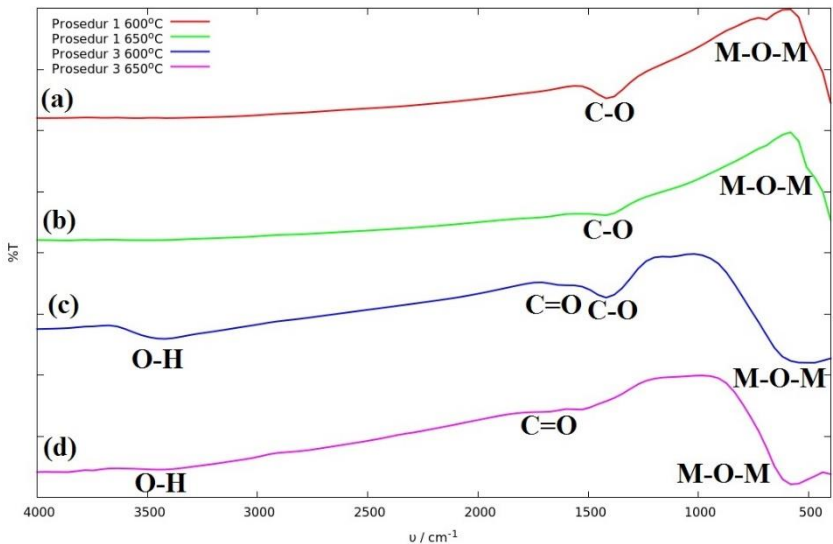


(b)

Gambar 4.5: Hasil pengamatan mikroskop optik dengan perbesaran 200x: (a) prosedur 1 suhu 650 °C, (b) prosedur 3 suhu 650 °C.

4.5 Analisis Gugus Fungsi Menggunakan FTIR

Analisis menggunakan FTIR digunakan untuk mengetahui gugus fungsi yang terdapat pada serbuk dan mengidentifikasi apakah masih terdapat senyawa organik pada serbuk PZT setelah proses penganilan. Spektra yang dihasilkan pada prosedur 1 dan prosedur 3 ditunjukkan pada Gambar 4.5.



Gambar 4.6: Spektra FTIR serbuk PZT pada suhu pengaliran: (a) prosedur 1 600 °C, (b) prosedur 1 650 °C, (c) prosedur 3 600 °C dan (d) prosedur 3 650 °C.

Berdasarkan Gambar 4.5, didapatkan vibrasi pada beberapa bilangan gelombang yang menunjukkan gugus fungsi yang dapat diinterpretasikan pada Tabel 4.3.

Tabel 4.3: Data vibrasi gugus fungsi serbuk PZT

No.	Bilangan gelombang (cm ⁻¹)				Interpretasi
	Prosedur 1 1 (600 °C)	Prosedur 1 1 (650 °C)	Prosedur 3 3 (600 °C)	Prosedur 3 3 (650 °C)	
1.	-	-	3422,25	3445,39	Vibrasi ulur O-H
2.	-	-	1559,14	1524,42	Vibrasi ulur C=O
3.	1400,99	1404,84	1420,27	-	C-O
4.	685,45	508,01	551,72	571,65	M-O-M

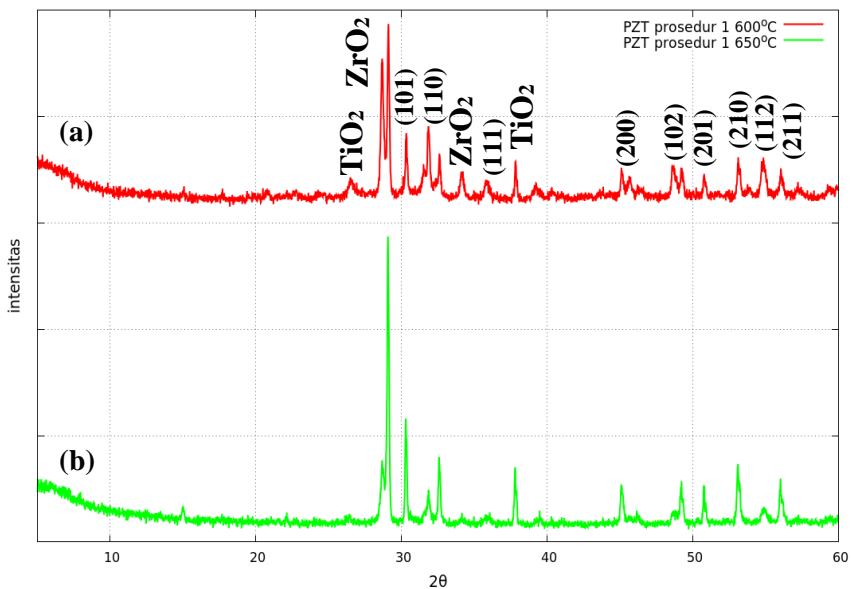
Berdasarkan Gambar 4.6 dan Tabel 4.3 menunjukkan vibrasi yang berbeda-beda pada serbuk PZT setelah proses penganilan. Garis merah menunjukkan spektra serbuk PZT prosedur 1 dengan suhu penganilan 600 °C dimana terdapat dua vibrasi gugus fungsi. Bilangan gelombang 1400,99 cm^{-1} menunjukkan adanya vibrasi C-O dengan intensitas rendah. Selain itu terdapat vibrasi pada bilangan gelombang 685,45 cm^{-1} yang merupakan vibrasi untuk M-O-M. Garis hijau menunjukkan spektra serbuk PZT prosedur 1 dengan suhu penganilan sebesar 650 °C. Terdapat dua vibrasi yaitu pada bilangan gelombang 1404,84 cm^{-1} dan bilangan gelombang 508,01 cm^{-1} yang menunjukkan adanya gugus fungsi C-O dan M-O-M. Kedua spektra prosedur 1 baik menggunakan suhu penganilan 600 °C dan 650 °C tidak terdapat vibrasi OH.

Garis biru menunjukkan spektra serbuk PZT prosedur 3 dengan suhu penganilan 600 °C dimana pada spektra dihasilkan empat pita vibrasi. Bilangan gelombang 3422,25 cm^{-1} menunjukkan adanya gugus OH yang dimungkinkan masih adanya air yang terjebak pada serbuk PZT. Vibrasi pada bilangan gelombang 1559,14 cm^{-1} dengan intensitas rendah dan bilangan gelombang 1420,27 cm^{-1} dengan intensitas sedang yang menunjukkan adanya gugus C=O dan C-O. Terdapat pula vibrasi pada bilangan gelombang 551,72 cm^{-1} yang menunjukkan adanya gugus fungsi M-O-M. Garis ungu menunjukkan spektra serbuk PZT prosedur 3 dengan suhu penganilan 650 °C dimana terdapat tiga vibrasi. Vibrasi pertama pada bilangan gelombang 3445,39 cm^{-1} dengan intensitas rendah menunjukkan adanya gugus OH yang dimungkinkan berasal dari air yang terjebak pada serbuk PZT. Vibrasi kedua pada bilangan gelombang 1524,42 cm^{-1} yang menunjukkan adanya gugus C=O dengan intensitas yang cukup rendah. Vibrasi ketiga pada bilangan gelombang 571,65 cm^{-1} menunjukkan adanya gugus M-O-M. Adanya vibrasi gugus C=O pada serbuk PZT dimungkinkan berasal dari gugus fungsi pelarut yang digunakan yaitu asam asetat. Adanya pita vibrasi pada bilangan gelombang 1400 cm^{-1} hingga bilangan gelombang 1430 cm^{-1} dimungkinkan berasal dari PEG 600. Adanya vibrasi-vibrasi gugus fungsi dari air, asam asetat maupun PEG 600 mengindikasikan masih terdapat senyawa organik yang belum menguap selama proses penganilan. Vibrasi disekitar 400 cm^{-1} hingga 690 cm^{-1} menunjukkan adanya vibrasi khas M-O-M. Vibrasi tersebut mengindikasikan bahwa

jaringan polimer antar logam penyusun PZT melalui ikatan dengan atom O sudah terbentuk walaupun dengan intensitas yang masih rendah.

4.6 Analisis Struktur Kristal Menggunakan XRD

Serbuk PZT yang dihasilkan dari proses penganilan dianalisis lebih lanjut untuk mengetahui apakah kristal PZT telah terbentuk dengan menggunakan XRD. Kemudian hasil analisis menggunakan XRD berupa difraktogram dibandingkan menggunakan standar data JCPDS ^(a) nomor 33-784 sebagai pembanding utama yang dapat dilihat pada Lampiran C. Difraktogram dan difraksi bidang kristal yang dihasilkan pada prosedur 1 ditampilkan pada Gambar 4.7 serta Tabel 4.4.

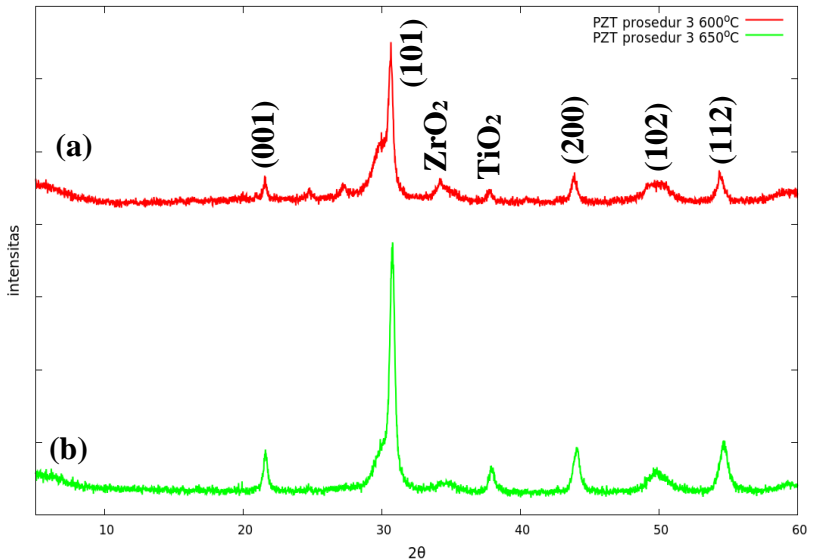


Gambar 4.7: Difraktogram serbuk PZT prosedur 1: (a) suhu penganilan 600 °C dan (b) suhu penganilan 650 °C.

Tabel 4.4: Data difraksi bidang kristal serbuk PZT prosedur 1.

2 θ	Nilai hkl	Prosedur 1	
		Suhu penganilan 600 °C	Suhu penganilan 650 °C
26,5002	(101) TiO ₂	√	√
29,0622	(111) ZrO ₂	√	√
30,3225	(101)	√	√
32,6136	(110)	√	√
34,0878	(002) ZrO ₂	√	-
35, 8263	(111)	√	-
37,7940	(103) TiO ₂	√	√
45,0904	(200)	√	√
49,2089	(102)	√	√
50,7351	(201)	√	√
53,1311	(210)	√	√
54,7238	(112)	√	√
56,0316	(211)	√	√

Difraksi bidang kristal PZT muncul baik pada pada suhu penganilan 600 °C maupun 650 °C. Pada suhu penganilan 600 °C mulai terbentuk kristal PZT dengan difraksi bidang kristal (101), (101), (110), (111), (200), (102), (201), (210), (112) dan (211). Namun intensitas bidang kristal yang dihasilkan pada difraktogram dengan suhu penganilan 600°C masih cukup rendah. Kristal PZT yang terbentuk pada serbuk PZT prosedur 1 dengan suhu penganilan 650 °C menghasilkan difraksi bidang kristal yang sama seperti suhu penganilan 600 °C dengan intensitas bidang kristal yang lebih tinggi. Terdapat senyawa lain yang dihasilkan berupa ZrO₂ dan TiO₂ pada kedua suhu penganilan. Suhu penganilan 650 °C menghasilkan senyawa lain dengan intensitas lebih tinggi dibandingkan dengan suhu penganilan 600 °C. Intensitas ZrO₂ yang cukup tinggi dimungkinkan terjadi karena semakin besar prosentase atom Zr dan berkurangnya prosentase atom Ti. Hal ini mengakibatkan dominannya terbentuk senyawa ZrO₂ dengan intensitas 100% pada serbuk PZT prosedur 1. Difraktogram dan difraksi bidang kristal serbuk PZT prosedur 3 ditunjukkan pada Gambar 4.8 dan Tabel 4.5.



Gambar 4.8: Difraktogram serbuk PZT prosedur 3: (a) suhu pengaliran 600 °C dan (b) suhu pengaliran 650 °C.

Tabel 4.5: Data difraksi bidang kristal serbuk PZT prosedur 3.

2θ	Nilai hkl	Prosedur 3	
		Suhu penganilan 600 °C	Suhu penganilan 650 °C
21,5548	(001)	√	√
30,6704	(101)	√	√
34,2074	(002) ZrO ₂	√	-
37,7727	(103) TiO ₂	√	√
43,8350	(002)	√	√
44,1047	(200)	√	√
49,7315	(102)	√	√
54,3574	(112)	√	√

Hasil berupa puncak–puncak pada difraktogram menunjukkan terbentuknya kristal PZT yang ditunjukkan dengan munculnya difraksi bidang kristal yang sesuai dengan data JCPDS no.33-784. Struktur kristal PZT yang dihasilkan pada prosedur 3 lebih baik

dibandingkan prosedur 1. Hal ini dapat dilihat dengan munculnya puncak-puncak yang lebih tajam terutama pada difraksi bidang kristal (101) yang sangat tinggi. Selain itu senyawa lain yang dihasilkan berupa TiO_2 dengan intensitas rendah muncul pada kedua suhu, sedangkan ZrO_2 muncul pada suhu penganilan 600 °C. Munculnya senyawa lain dikarenakan masih terdapat senyawa organik yang masih terjebak pada serbuk PZT yang dihasilkan.

Pengaruh variasi suhu penganilan menunjukkan perbedaan pada hasil karakterisasi menggunakan XRD. Suhu penganilan 650 °C menghasilkan puncak-puncak yang lebih tajam dibandingkan dengan suhu penganilan 600 °C. Hal ini menunjukkan suhu optimum proses penganilan pada pembuatan serbuk PZT adalah 650 °C. Penggunaan suhu yang optimum pada proses penganilan akan menghasilkan struktur perovskit yang baik karena atom-atom penyusun berupa Pb, Zr, Ti dan O akan menempati posisi ABO_3 .

4.7 Analisis Ukuran Kristal

Suhu penganilan yang digunakan pada pembentukan serbuk PZT akan memengaruhi ukuran kristal yang dihasilkan. Ukuran kristal dapat diketahui menggunakan nilai 2θ , intensitas, lebar puncak difraksi (FWHM) dengan memodifikasi persamaan Debye-Scherrer. Grafik hubungan antara $\ln 1/\cos\theta$ terhadap $\ln \beta$ (FWHM) akan menghasilkan intersep yang dapat digunakan dalam pengukuran ukuran kristal berdasarkan persamaan 2.5 dengan hasil yang ditunjukkan pada Tabel 4.6 hingga Tabel 4.9. Hasil perhitungan ukuran serbuk PZT ditunjukkan pada Lampiran D. Ukuran kristal serbuk PZT prosedur 1 dan prosedur 3 ditunjukkan pada Tabel 4.10.

Tabel 4.6: Ukuran kristal serbuk PZT prosedur 1 dan suhu penganilan 600 °C menggunakan persamaan Debye-Scherrer.

No	2θ	Difraksi bidang kristal	$1/\cos \theta$	FWHM (β) Derajat	FWHM (β) Radian	$\ln 1/\cos \theta$ (x)	$\ln \beta$ (y)
1.	30,32 25	101	1,036 1	0,0669	0,0012	0,03 55	-6,72543
2.	31,81 23	110	1,039 8	0,0669	0,0012	0,03 90	-6,72543
3.	32,61 36	110	1,041 9	0,0836	0,0015	0,04 10	-6,50229

4.	34,08 78	(002) ZrO ₂	1,045 9	0,2342	0,0041	0,04 49	-5,49677
5.	37,83 07	(103) TiO ₂	1,057 1	0,0836	0,0015	0,05 55	-6,50229

Tabel 4.7: Ukuran kristal serbuk PZT prosedur **1** dan suhu pemanasan 650 °C menggunakan persamaan Debye-Scherrer.

No	2θ	Difraksi bidang kristal	1/cos θ	FWHM (β) Derajat	FWHM (β) Radian	ln 1/ cos θ (x)	ln β (y)
1.	30,2764	101	1,0359	0,0836	0,0015	0,035 3	-6,50229
2.	32,5807	110	1,0418	0,1004	0,0018	0,040 9	-6,31997
3.	45,0904	200	1,0827	0,0836	0,0015	0,079 5	-6,50229
4.	49,2089	102	1,0999	0,1171	0,0021	0,095 2	-6,16582
5.	53,0734	112	1,1178	0,1224	0,0021	0,111 4	-6,16582

Tabel 4.8: Ukuran kristal serbuk PZT prosedur **3** dan suhu pemanasan 600 °C menggunakan persamaan Debye-Scherrer.

No.	2θ	Difraksi bidang kristal	1/cos θ	FWHM (β) Derajat	FWHM (β) Radian	ln 1/ cos θ (x)	ln β (y)
1.	29,6918	101	1,0345	0,4015	0,0070	0,033 9	-4,96185
2.	30,6704	101	1,0369	0,3011	0,0053	0,036 2	-5,24005
3.	34,2074	(002) ZrO ₂	1,0463	0,2007	0,0035	0,045 3	-5,65499
4.	37,7727	(103) TiO ₂	1,0569	0,2627	0,0046	0,055 3	-5,38170
5.	43,8350	002	1,0779	0,2007	0,0035	0,075 0	-5,65499
6.	54,3574	112	1,1241	0,1004	0,0018	0,117 0	-6,31997

Tabel 4.9: Ukuran kristal serbuk PZT prosedur **3** dan suhu penganilan 650 °C menggunakan persamaan Debye-Scherrer.

No.	2 θ	Difraksi bidang kristal	1/cos θ	FWHM (β) Derajat	FWHM (β) Radian	ln 1/ cos θ (x)	ln β (y)
1.	21,5548	001	1,0180	0,2342	0,0041	0,017 8	-5,49677
2.	44,1047	200	1,0789	0,2676	0,0047	0,075 9	-5,36019
3.	49,7315	102	1,1022	0,3346	0,0059	0,097 3	-5,13280
4.	43,8350	002	1,0006	0,2007	0,0035	0,000 6	-5,65499
5.	54,6745	112	1,1257	0,2342	0,0041	0,118 4	-5,49677

Tabel 4.10: Ukuran kristal serbuk PZT prosedur **1** dan prosedur **3** dengan variasi suhu penganilan.

Prosedur	Suhu penganilan (°C)	L (nm)
1	600	57,71
	650	98,29
3	600	15,27
	650	36,16

Data Tabel 4.10 menunjukkan bahwa pada kedua prosedur menghasilkan ukuran kristal yang beragam. Penggunaan suhu yang berbeda pada proses penganilan berbanding lurus terhadap ukuran kristal yang terbentuk. Semakin tinggi suhu penganilan maka semakin besar ukuran kristal yang dihasilkan. Ukuran kristal yang dihasilkan pada suhu penganilan 650 °C pada kedua prosedur lebih besar dibandingkan dengan ukuran kristal pada suhu penganilan 600 °C. Hal ini dikarenakan semakin besar suhu penganilan maka semakin besar energi kinetik yang diberikan kepada atom–atom penyusun kristal. Keadaan ini menyebabkan semakin besar ukuran kristal seiring dengan peningkatan suhu penganilan yang digunakan.

BAB V

KESIMPULAN DAN SARAN

5.1 Kesimpulan

Berdasarkan hasil penelitian dan pembahasan yang telah dilakukan maka dalam penelitian ini dapat disimpulkan:

1. Sintesis PZT dapat dilakukan menggunakan prosedur **1,2** dan **3** melalui metode sol-gel dengan menggunakan pelarut asam asetat dan penyetabil PEG 600. Sintesis PZT yang menghasilkan kristal serbuk PZT terbaik adalah prosedur **3**.
2. Pembentukan kristal serbuk PZT menggunakan PEG 600 menghasilkan struktur kristal perovskit yang sesuai dengan data JCPDS nomor 33-784. Berdasarkan hasil analisis menggunakan XRD, spektra yang dihasilkan tidak dapat digunakan untuk mengetahui dua jenis struktur kristal rhombohedral dan tetragonal.
3. Variasi suhu penganilan memengaruhi pembentukan kristal serbuk PZT. Hasil uji morfologi menunjukkan penganilan pada suhu 650 °C menghasilkan serbuk PZT yang lebih baik dibandingkan suhu 600 °C. Semakin besar suhu penganilan yang digunakan maka semakin besar ukuran kristal serbuk PZT yang dihasilkan. Ukuran kristal PZT prosedur **1** dan prosedur **3** dengan suhu penganilan 650 °C secara berurutan adalah 98,29 nm dan 36,16 nm.

5.2 Saran

Berdasarkan hasil penelitian yang telah dilakukan, perlu dilakukan sintesis menggunakan prosedur **3** dengan menggunakan variasi lama pengadukan selama proses pemeraman agar didapatkan hasil prekursor PZT yang lebih murni. Selain itu, perlu dilakukan pembuatan lapis tipis menggunakan prosedur **3** sehingga diketahui penyebaran prekursor diatas substrat silikon.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] Bhaskar, A., Chang, T. H., Chang, H.Y. dan Cheng, S.Y., 2007, **Low-Temperature Crystallization of Sol-Gel-Derived Lead Zirconate Titanate Thin Films Using 2.45 GHz Microwaves**, *Elsevier*, vol. 515, pp. 2891–2896.
- [2] Tichy, J., Erhart, J., Kittinger, E. dan Privratska, 2010, **Fundamentals of Piezoelectrics Sensorics**, Springer Heidelberg Dordrecht, New York.
- [3] Moret, M.P.F., 2002 **Preparation and Properties of Pb(Zr, Ti)O₃ Films Grown by Metalorganic Chemical Vapor Deposition**, *Thesis*, University of Nijmegen, Netherlands.
- [4] Bi, Z., Zhang, Z. dan Fan, P., 2007 **Characterization of PZT Ferroelectric Thin Films by RF-Magnetron Sputtering**, *J. Phys. Conf. Ser.*, vol. 61, pp. 120–124.
- [5] Sunarno, 2003 **Implementasi Piezoelektrik sebagai Sensor Identifikasi Kendaraan yang Melintasi Jembatan**, vol. 29, no. 1, pp. 71–78.
- [6] Zhuravlev, M.Y., Sabirianov, R.F., Jaswal, S.S. dan Tsymbal, E.Y., 2005, **Giant Electroresistance in Ferroelectric Tunnel Junctions**, *Phys. Rev. Lett.*, vol. 94, no. 24, pp. 1–4.
- [7] Wasa, K., Kanno, I. dan Kotera, H., 2009, **Fundamentals of Thin Film Piezoelectric Materials and Processing Design for A Better Energy Harvesting MEMS**, *Power MEMS*, vol. 61, pp. 61–66.
- [8] Masruroh, Umeda, M. dan Toda, M., 2012, **Influence of Temperature Annealing on the Crystallization, Hysteresis Loops and Leakage Current in Au / PZT / Pt / TiO₂ / Si (100) Films Grown by Low Temperature MOCVD Method**, *J. Appl. Phys. Math.*, vol. 2, no. 6, pp. 1–4.
- [9] Kim, C.S., Kim, S.K. dan Lee, S.Y., 2003, **Fabrication and Characterization of PZT-PMWSN Thin Film Using Pulsed**

Laser Deposition, *Mater. Sci. Semicond. Process.*, vol. 5, pp. 93–96.

- [10] Zak, A.K. dan Majid, W.H.A., 2010, **Synthesis and Characterization of Sol-Gel Derived Single-Phase PZT Nanoparticles in Aqueous Polyol Solution**, *J. Optoelectron. Adv. Mater.*, vol. 12, no. 8, pp. 1714–1719.
- [11] Vojisavljevic, Z., Bronkovic, K., Sreckovic, G., Recnik, T. dan Brankovic, A., 2010, **Preparation of Ultrathin PZT Films by A Chemical Solution Deposition Method From A Polymeric Citrate Precursor**, *J. Eur. Ceram. Soc.*, vol. 30, no. 2, pp. 485–488.
- [12] Widodo, S., 2010, **Teknologi Sol Gel Pada Pembuatan Nano Kristalin Metal Oksida Untuk Aplikasi Sensor Gas**, *Semin. Rekayasa Kim. dan Proses*, p. E-20-1 – E-20-8.
- [13] Hossain, M. dan Kim, A., 2009, **The Effect of Acetic Acid On Morphology of PZT Nanofibers Fabricated by Electrospinning**, *Mater. Lett.*, vol. 63, no. 9–10, pp. 789–792.
- [14] Manggara, A.B., 2013, **Pengaruh Perbandingan Zr:Ti terhadap Struktur Kristal dan Komposisi Lapisan Tipis PZT ($\text{PbZr}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$) Hasil Sintesis Metode Sol-Gel**, *Tesis*, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Brawijaya, Malang.
- [15] Pramathesh, T. dan Ankur, S., 2013, **Piezoelectric Crystals: Future Source of Electricity**, *Int. J. Sci. Eng. Technol.*, vol. 2, no. 4, pp. 260–262.
- [16] Hananto, F.S., Santoso, D.R. dan Julius, 2011, **Application of Piezoelectric Material Film PVDF (Polyvinylidene Flouride) as Liquid Viscosity Sensor**, *Neutrino*, vol. 3, no. 2, pp. 129–142.
- [17] Wu, Y., 2011, **Piezoelectric Response of Lead Titanate as A Function of Size**, *Thesis*, University of Groningen. Netherlands.
- [18] Tseng, T.K., Lin, Y.S., Chen, Y.J. dan Chu, A., 2010, **A Review of Photocatalysts Prepared by Sol-Gel Method for VOCs Removal**, *Int. J. Mol. Sci.*, vol. 11, no. 6, pp. 2336–2361.

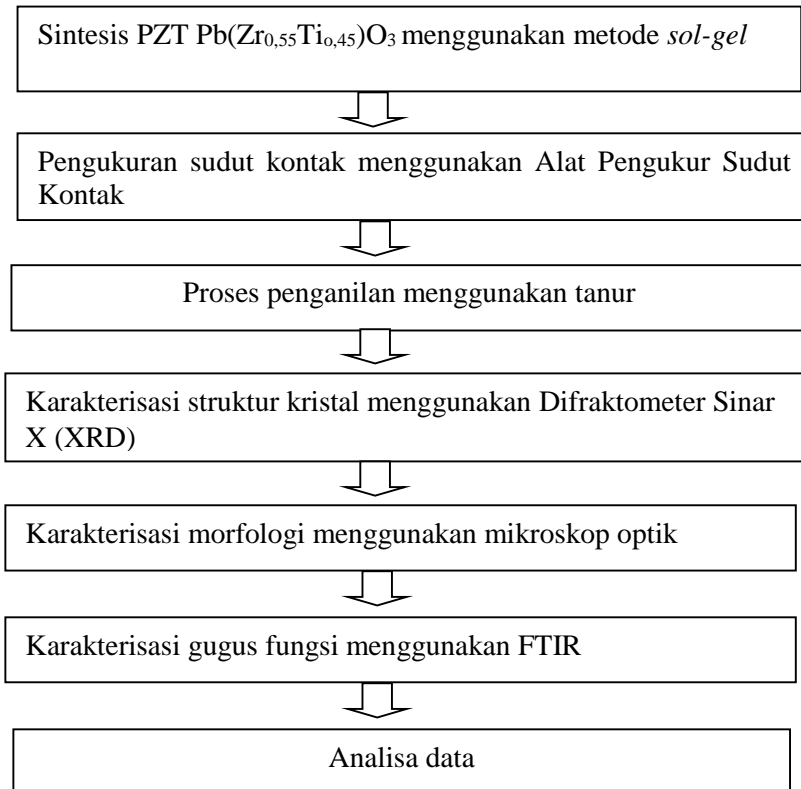
- [19] Samiey, B., Cheng, C.H. dan Wu, J., 2014, **Organic-Inorganic Hybrid Polymers as Adsorbents for Removal of Heavy Metal Ions from Solutions: A Review**, *Materials (Basel)*., vol. 7, no. 2, pp. 673–726.
- [20] Lapailaka, T., 2013, **Studi Pengaruh Perbandingan Pb/Zr/Ti Terhadap Struktur, Komposisi Fase dan Morfologi Kristal Lapisan Tipis PZT ($\text{PbZr}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$)**, *Tesis*, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Brawijaya, Malang.
- [21] A'yun, Q., 2016, **Sintesis dan Karakterisasi Lapis Tipis Timbal Zirkonat Titanat Menggunakan Prekursor Zirkonium Nitrat dan Penyetabil Asetil Aseton dengan Variasi Pemeraman Sintesis dan Karakterisasi Lapis Tipis Timbal Zirkonat Titanat Menggunakan Prekursor Zirkonium Nitrat**, *Skripsi*, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Brawijaya, Malang.
- [22] Umiati, N.A.K., Irzaman, Budiman, M., dan Barmawi, M., 2001, **Efek Annealing Pada Penumbuhan Film Tipis Ferroelektrik $\text{PbZr}_{0,625}\text{Ti}_{0,375}\text{O}_3$ (PZT)**, *Kontribusi Fis. Indones.*, vol. 12, no. 4, pp. 2–6.
- [23] Alim, T., 2013, **Mikroskop Cahaya**, *www.biologi-sel.com*, diakses pada tanggal 10 Februari 2017 pukul 15.47 WIB.
- [24] Respati, S.M.B., 2008, **Macam-Macam Mikroskop**, *Momentum*, vol. 4, no. 2, pp. 42-44.
- [25] Kim, M., 2011, **Digital Holographic Microscopy: Principles, Techniques, and Applications**, Springer Science Bussiness Media, London.
- [26] Yadav, L.D.S., 2005, **Organic Spectroscopy**. Springer Science Bussines Media, London.
- [27] Harwood, L.M. and Claridge, T.D.W., 1996, **Introduction to Organic Spectroscopy**, Oxford Science Publications, United Kingdom.
- [28] Lee, S.C., Some.S., Kim, S.W., Kim, S.J., Seo, J., Lee, J., Lee, T., Ahn, J.H., Choi, H.J., dan Jun, S.C., 2015, **Efficient Direct**

Reduction of Graphene Oxide by Silicon Substrate, Scientific Reports, 5, 12306.

LAMPIRAN

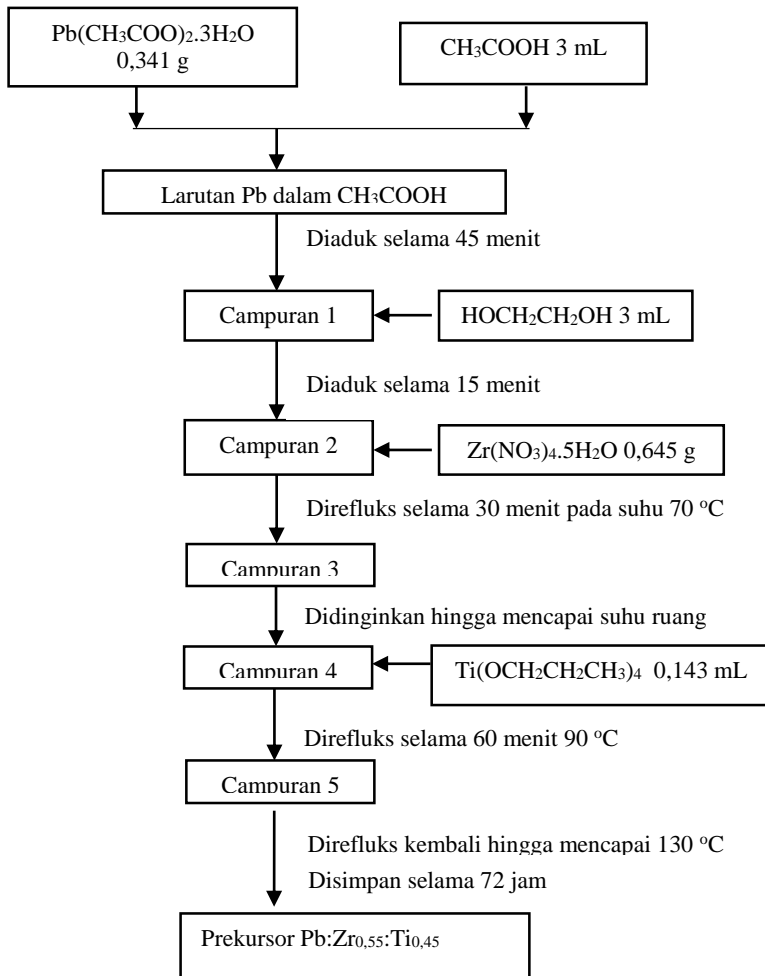
Lampiran A

A.1 Diagram Alir Penelitian

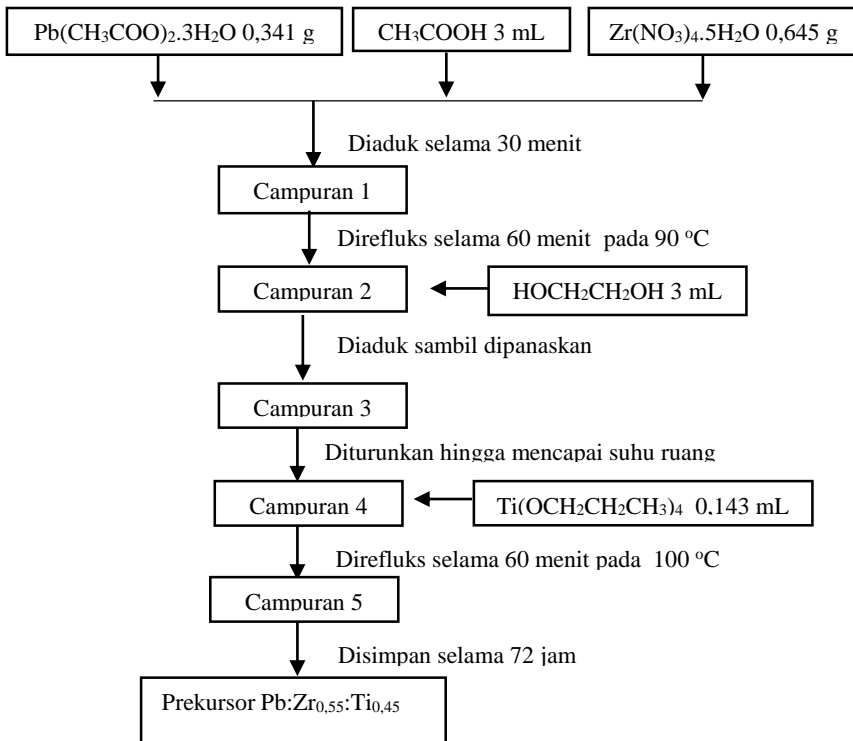


A.2 Skema Kerja

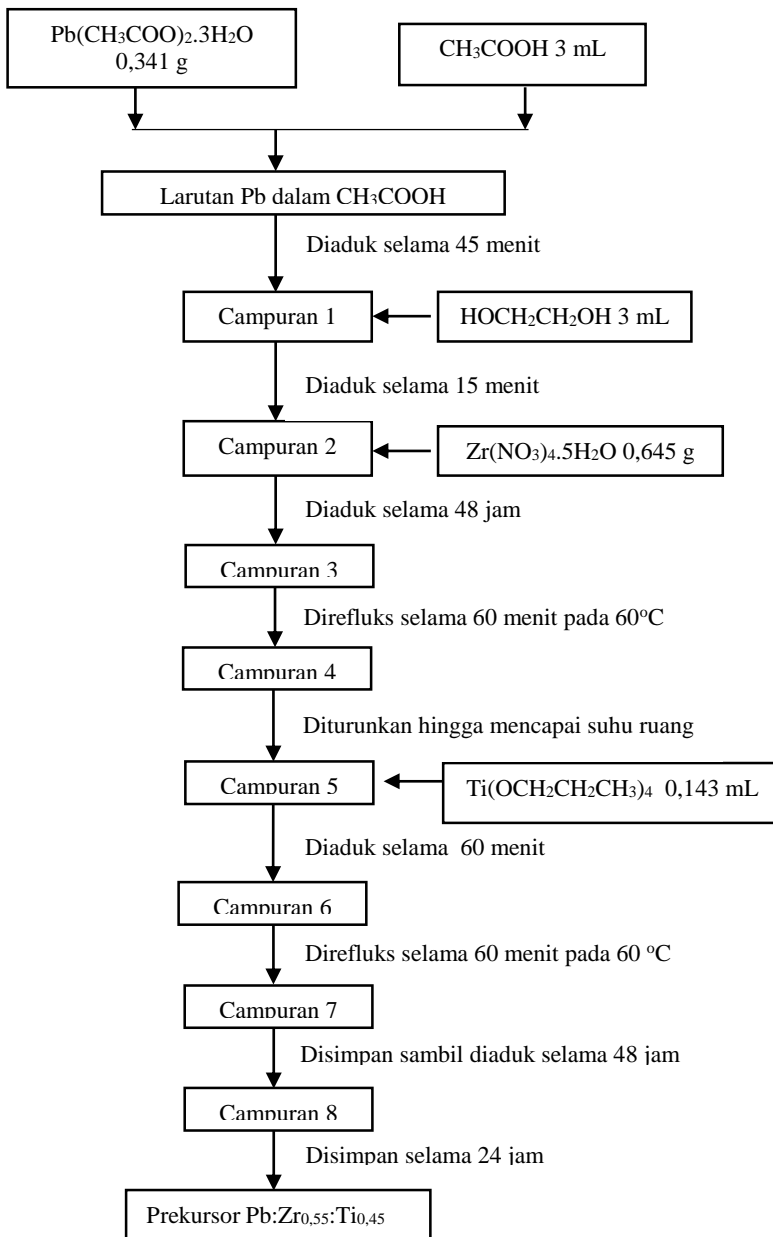
A.2.1 Prosedur 1



A.2.2 Prosedur 2



A.2.3 Prosedur 3



Lampiran B

Perhitungan Prekursor untuk Sintesis PZT ($\text{PbZr}_{0,55}\text{Ti}_{0,45}$)

B.1 Larutan Pb 3 mL dengan Konsentrasi 0,3 M

Nama bahan = $\text{Pb}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$

Mr = 379,33 gram/mol

1 mol Pb setara dengan 1 mol $\text{Pb}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$

Mol Pb = $[\text{Pb}] \times \text{Volume larutan Pb}$

$$= 0,3 \text{ M} \times 3 \text{ mL} \times \frac{1 \text{ L}}{1000 \text{ mL}}$$

$$= 0,3 \frac{\text{mol}}{\text{L}} \times 3 \text{ mL} \times \frac{1 \text{ L}}{1000 \text{ mL}}$$

$$= 0,0009 \text{ mol}$$

Fraksi mol Pb dalam $\text{Pb}(\text{Zr}_{0,55}\text{Ti}_{0,45})\text{O}_3$ adalah 1 sehingga massa $\text{Pb}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ yang dibutuhkan:

= mol $\text{Pb}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O} \times \text{Mr } \text{Pb}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$

$$= 0,0009 \text{ mol} \times 379,33 \frac{\text{g}}{\text{mol}}$$

$$= 0,341 \text{ g}$$

B.2 Volume Zirkonium(IV) Nitrat Pentahidrat

Nama bahan = $\text{Zr}(\text{NO}_3)_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$

Mr = 429,32 gram/mol

1 mol Zr setara dengan 1 mol $\text{Zr}(\text{NO}_3)_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$

Fraksi mol Zr dalam $\text{Pb}(\text{Zr}_{0,55}\text{Ti}_{0,45})\text{O}_3$ adalah 0,55 sehingga massa $\text{Zr}(\text{NO}_3)_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ yang dibutuhkan:

$$= 0,55 \times 0,0009 \text{ mol}$$

$$= 0,000495 \text{ mol}$$

Massa $\text{Zr}(\text{NO}_3)_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ yang dibutuhkan:

= mol $\text{Zr}(\text{NO}_3)_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O} \times \text{Mr } \text{Zr}(\text{NO}_3)_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$

$$= 0,000495 \text{ mol} \times 429,32 \frac{\text{g}}{\text{mol}}$$

$$= 0,213 \text{ g}$$

$\text{Zr}(\text{NO}_3)_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ yang digunakan dalam bentuk serbuk dengan kemurnian 33%, maka massa $\text{Zr}(\text{NO}_3)_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ 33% yang digunakan:

$$= 0,213 \text{ g} \times \frac{100}{33}$$

$$= 0,645 \text{ g}$$

B.3 Volume Titanium(IV) Tetra-n-propoksida

Nama bahan = $\text{Ti}(\text{OCH}_2\text{CH}_2\text{CH}_3)_4$

Mr = 284,23 gram/mol

1 mol Ti setara dengan 1 mol $\text{Ti}(\text{OCH}_2\text{CH}_2\text{CH}_3)_4$

Fraksi mol Ti dalam $\text{Pb}(\text{Zr}_{0,55}\text{Ti}_{0,45})\text{O}_3$ adalah 0,45 sehingga massa $\text{Ti}(\text{OCH}_2\text{CH}_2\text{CH}_3)_4$ yang dibutuhkan:

$$= 0,45 \times 0,0009 \text{ mol}$$

$$= 0,000405 \text{ mol}$$

Massa $\text{Ti}(\text{OCH}_2\text{CH}_2\text{CH}_3)_4$ yang dibutuhkan

$$= \text{mol Ti}(\text{OCH}_2\text{CH}_2\text{CH}_3)_4 \times \text{Mr Ti}(\text{OCH}_2\text{CH}_2\text{CH}_3)_4$$

$$= 0,000405 \text{ mol} \times 284,23 \frac{\text{g}}{\text{mol}}$$

$$= 0,115 \text{ g}$$

$\text{Ti}(\text{OCH}_2\text{CH}_2\text{CH}_3)_4$ yang digunakan dalam bentuk larutan dengan kemurnian 98%, maka massa $\text{Ti}(\text{OCH}_2\text{CH}_2\text{CH}_3)_4$ 98% yang digunakan:

$$= 0,115 \text{ g} \times \frac{100}{98}$$

$$= 0,117 \text{ g}$$

Massa jenis $\text{Ti}(\text{OCH}_2\text{CH}_2\text{CH}_3)_4 = 1,050 \text{ gram/mL}$

Maka volume $\text{Ti}(\text{OCH}_2\text{CH}_2\text{CH}_3)_4$ yang dibutuhkan:

$$= \frac{\text{massa titanium(IV) tetra-n-propoksida 98\%}}{\text{massa jenis titanium(IV) tetra-n-propoksida 98\%}}$$

$$= \frac{0,117 \text{ g}}{1,050 \frac{\text{g}}{\text{mL}}}$$

$$= 0,111 \text{ mL}$$

Lampiran C.

Joint Committee on Powder Diffraction Standart (JCPDS)

Lampiran C.1 JCPDS XRD PZT

Data 33-784						
<i>Lead Zirconium Titanium Oxide</i>						
d (Å)	A	sinθ=nλ/2d	Radiation	θ	2θ	hkl
4,146	1,54056	0,185788712	0,186874	10,7125 5	21,425101	001
4,036	1,54056	0,190852329	0,19203	11,0081 1	22,01622	100
2,89	1,54056	0,266532872	0,269794	15,4659	30,931794	101
2,85	1,54056	0,270273684	0,273677	15,6885 1	31,377013	110
2,351	1,54056	0,327639302	0,333804	19,1352 5	38,270508	111
2,073	1,54056	0,371577424	0,380708	21,824	43,647996	002
2,018	1,54056	0,381704658	0,39164	22,4506 9	44,901389	200
1,844	1,54056	0,417722343	0,430937	24,7034	49,406793	102
1,81	1,54056	0,425569061	0,439591	25,1994 6	50,398927	201 , 210
1,716	1,54056	0,448881119	0,465513	26,6854 5	53,370897	210
1,677	1,54056	0,459320215	0,47723	27,3571 2	54,71424	112
1,655	1,54056	0,465425982	0,484116	27,7518 6	55,503727	211
1,446	1,54056	0,532697095	0,561784	32,2041 9	64,408338 9	002
1,427	1,54056	0,539789769	0,570187	32,6859	65,371798	220
1,382	1,54056	0,557366136	0,59121	33,8910 2	67,78205	003
1,361	1,54056	0,565966201	0,601605	34,4869	68,973793	212
1,35	1,54056	0,570577778	0,607209	34,8081 7	69,616344	221 , 300
1,308	1,54056	0,588899083	0,629696	36,0972 2	72,194445	103
1,28	1,54056	0,60178125	0,64573	37,0163 4	74,032686	301 , 310
1,244	1,54056	0,619196141	0,667719	38,2768 6	76,553722	113

1,22	1,54056	0,631377049	0,683328	39,1716 5	78,343301	311
1,14	1,54056	0,675684211	0,741892	42,5288 7	85,057732	203
1,13	1,54056	0,681663717	0,750034	42,9955 9	85,991172	302
1,12	1,54056	0,68775	0,758385	43,4743	86,948609	320
1,1	1,54056	0,700254545	0,775754	44,4699 7	88,939948	123
1,09	1,54056	0,706678899	0,784793	44,9881 5	89,976294	312
1,08	1,54056	0,713222222	0,794085	45,5207 7	91,041539	321
1,036 6	1,54056	0,743083156	0,837666	48,0190 6	96,038127	004
1,009 1	1,54056	0,763333664	0,868458	49,7842 1	99,568426	400
1,004	1,54056	0,767211155	0,874482	50,1295 2	100,25905	104
0,992 8	1,54056	0,775866237	0,888087	50,9094 4	101,81889	223
0,985 1	1,54056	0,781930768	0,897757	51,4637 9	102,92757	322
0,974 3	1,54056	0,790598378	0,911786	52,2679 6	104,53593	114
0,964 1	1,54056	0,798962763	0,925568	53,0580 7	106,11613	303
0,953	1,54056	0,808268625	0,941206	53,9544 7	107,90893	411
0,937 7	1,54056	0,821456756	0,963961	55,2589	110,5178	330
0,927 3	1,54056	0,830669686	0,980309	56,1960 8	112,39216	133
0,922 1	1,54056	0,835354083	0,988777	56,6814 6	113,36292	331
0,907	1,54056	0,849261301	1,014585	58,1609	116,3218	204
0,903	1,54056	0,853023256	1,021751	58,5717 3	117,14345	402
0,899	1,54056	0,856818687	1,029068	58,9911 5	117,98229	420
0,885	1,54056	0,870372881	1,055959	60,5326 9	121,06537	124
0,882	1,54056	0,877333333 3	1,062004	60,8793	121,7584	412
0,869 9	1,54056	0,88548109	1,087528	62,3423 9	124,68478	233

0,864 7	1,54056	0,89080606	1,099116	63,0066 5	126,01331	332
0,838 7	1,54056	0,918421366	1,164071	66,7302 1	133,46041	224
0,829	1,54056	0,929167672	1,192155	68,3400 9	136,68017	005
0,828	1,54056	0,930289855	1,195202	68,5147 8	137,02955	422
0,821 2	1,54056	0,937993181	1,216795	69,7525 8	139,50517	304

Lampiran C.2 JCPDS XRD ZrO₂

Data 00-014-0534				
Zirconium Dioxide (ZrO ₂)				
d (Å)	λ	hkl	2 θ	Intensity
2.949.000	1,541874	111	30,31	100
2.584.000	1,541874	2	34,72	20
2.542.000	1,541874	200	35,31	60
1.804.000	1,541874	220	50,56	100
1.551.000	1,541874	113	59,61	40
1.535.000	1,541874	311	60,3	80
1.474.000	1,541874	222	63,07	40
1.291.000	1,541874	4	73,33	40
1.270.000	1,541874	400	74,75	60

Lampiran C.3 JCPDS XRD ZrO

Data 00-020-0684				
Zirconium Oxide (ZrO)				
d (Å)	λ	hkl	2 θ	Intensity
2.667.000	1,541874	111	33,6	100
2.310.000	1,541874	200	38,99	98
1.633.000	1,541874	220	56,34	55
1.393.000	1,541874	311	67,21	33
1.333.700	1,541874	222	70,63	15
1.155.000	1,541874	400	83,75	7
1.059.900	1,541874	331	93,33	13
1.033.100	1,541874	420	96,53	20
0.943100	1,541874	422	109,66	17

Lampiran C.4 JCPDS XRD TiO₂

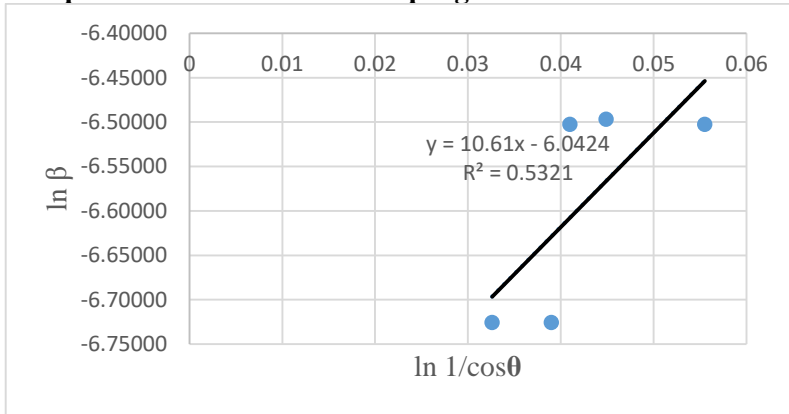
Data 00-001-0562				
Titanium Dioxide (TiO ₂)				
d (Å)	λ	hkl	2 θ	Intensity
3.520.000	1,541874	101	25,3	100
2.370.000	1,541874	103	37,97	24
1.880.000	1,541874	200	48,42	40
1.700.000	1,541874	105	53,94	28
1.660.000	1,541874		55,35	24
1.800.000	1,541874	213	62,79	24
1.360.000	1,541874	116	69,06	8
1.340.000	1,541874		70,24	8
1.260.000	1,541874	107	75,45	11

Lampiran C.5 JCPDS XRD TiO

Data 00-020-0684				
Titanium Oxide (TiO)				
d (Å)	λ	hkl	2 θ	Intensity
2.407.000	1,541874	111	37,35	45
2.085.000	1,541874	200	43,4	100
1.475.000	1,541874	220	63,02	50
1.259.000	1,541874	311	75,52	14
1.205.000	1,541874	222	79,55	12
1.044.000	1,541874	400	95,2	6
0.958000	1,541874	331	107,17	6
0.934000	1,541874	420	111,26	14
2.407.000	1,541874	111	37,35	45

Lampiran D Perhitungan Ukuran Kristal Serbuk PZT

Lampiran D.1 Prosedur 1 Suhu penganilan 600 °C



Diketahui:

Intersep = -6,0424

K = 0,89

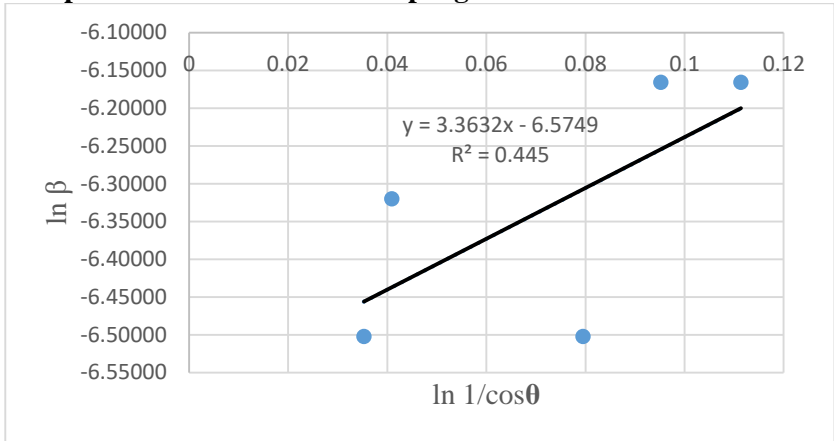
λ = 0,154060

$$L \text{ (Ukuran kristal)} = \frac{K\lambda}{e^{-\text{intersep}}}$$

$$= \frac{0,89 \times 0,154060}{e^{-6,0424}}$$

= 57,71 nm

Lampiran D.2 Prosedur 1 Suhu penganilan 650 °C



Diketahui:

Intersep = -6,5749

K = 0,89

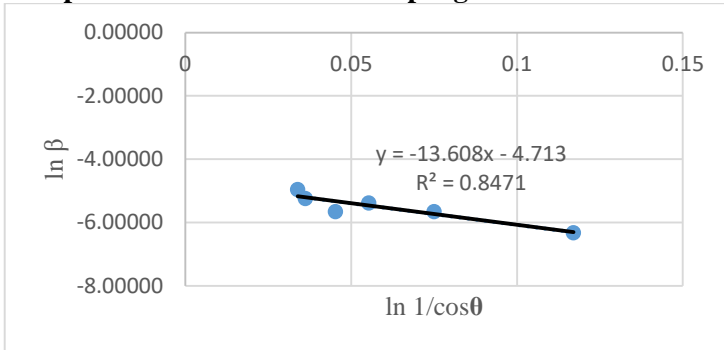
λ = 0,154060

$$L \text{ (Ukuran kristal)} = \frac{K\lambda}{\frac{e^{-\text{intersep}}}{0,89 \times 0,154060}}$$

$$= \frac{0,89 \times 0,154060}{e^{-6,5749}}$$

$$= 98,29 \text{ nm}$$

Lampiran D.3 Prosedur 3 Suhu penganilan 600 °C



Diketahui:

Intersep = -4,713

K = 0,89

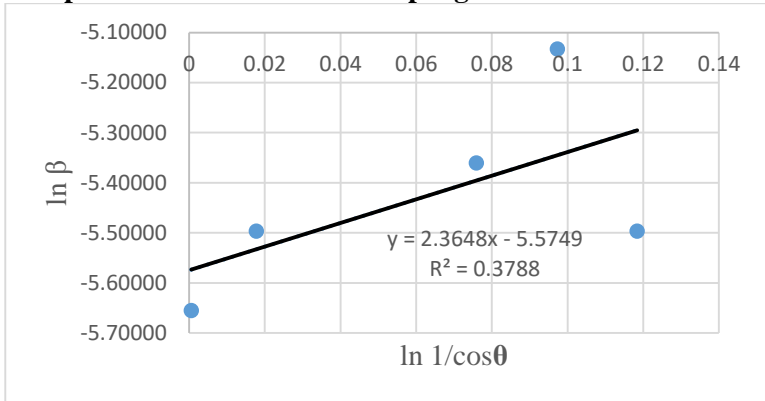
λ = 0,154060

$$L \text{ (Ukuran kristal)} = \frac{K\lambda}{e^{-\text{intersep}}}$$

$$= \frac{0,89 \times 0,154060}{e^{-4,713}}$$

$$= 15,27 \text{ nm}$$

Lampiran D.4 Prosedur 3 Suhu penganilan 650 °C



Diketahui:

Intersep = -5,5749

K = 0,89

λ = 0,154060

$$L \text{ (Ukuran kristal)} = \frac{K\lambda}{\frac{e^{-\text{intersep}}}{0,89 \times 0,154060}}$$

$$= \frac{36,16 \text{ nm}}{e^{-5,5749}}$$